

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-269298

(43)Date of publication of application : 30.09.2004

(51)Int.Cl.

C01B 31/02

B01D 8/00

B01D 11/02

(21)Application number : 2003-060316

(71)Applicant : MITSUBISHI CHEMICALS CORP

(22)Date of filing : 06.03.2003

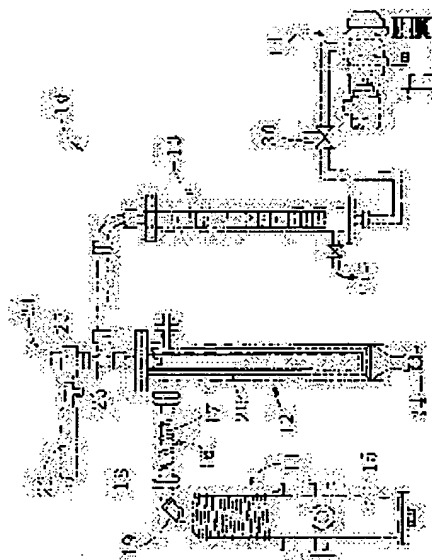
(72)Inventor : TAKEHARA HIROAKI  
TAKAKURA TAKESHI  
ARIKAWA MINEYUKI

## (54) METHOD AND APPARATUS FOR PREPARING FULLERENE

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method of preparing fullerene by which the fullerene is efficiently separated and recovered from a large quantity of a soot like material produced in the mass production of fullerene.

SOLUTION: A hydrocarbon raw material is incompletely combusted or thermally decomposed to produce a soot-like material-containing gas stream containing fullerene, a polycyclic aromatic compound and a carbon-based high polymer component. The high temperature soot-like material-containing gas stream is passed through a heat resistant filter 20 to separate and remove a vaporized material consisting essentially of the polycyclic aromatic compound to obtain the soot-like material-containing fullerene.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of]

rejection]

[Kind of final disposal of application other than  
the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

Copyright (C); 2000 Japan Patent Office

JP 2004-269298 A 2004.9.30

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-269298

(P2004-269298A)

(43) 公開日 平成16年9月30日(2004.9.30)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード (参考)
C01B 31/02	C01B 31/02	4D056
B01D 8/00	B01D 8/00	4D076
B01D 11/02	B01D 11/02	4G146
	101F	
	Z	
	A	

審査請求 未請求 請求項の数 16 O L (全 21 頁)

(21) 出願番号 特願2003-60316 (P2003-60316)  
 (22) 出願日 平成15年3月6日(2003.3.6)

(71) 出願人 000005968  
 三菱化学株式会社  
 東京都港区芝五丁目3番8号  
 (74) 代理人 100090697  
 弁理士 中前 富士男  
 (72) 発明者 佐藤 弘明  
 福岡県北九州市八幡西区黒崎城石1番1号  
 フロンティアカーボン株式会社内  
 (72) 発明者 高倉 剛  
 福岡県北九州市八幡西区黒崎城石1番1号  
 フロンティアカーボン株式会社内  
 (72) 発明者 青川 幸幸  
 福岡県北九州市八幡西区黒崎城石1番1号  
 フロンティアカーボン株式会社内

最終頁に続く

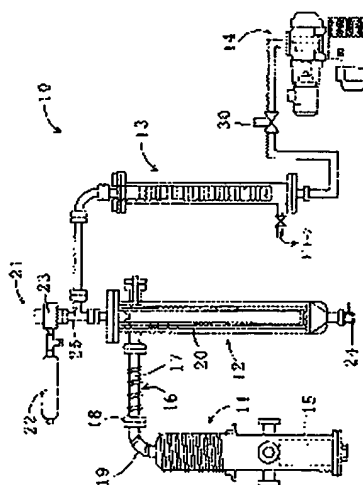
(54) 【発明の名称】 フラーレンの製造方法及びその製造装置

## (57) 【要約】

【課題】 フラーレンの大量製造の際、生成する大量の煤状物質からフラーレンを効率良く分離回収するフラーレンの製造方法及びその製造装置を提供する。

【解決手段】 炭化水素原料を不完全燃焼させるか又は炭化水素原料を熱分解することにより、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流を生成させ、この高温状態の煤状物質含有気流を耐熱性フィルター20に通して、多環状芳香族化合物を主体とする気化物を分離除去し、フラーレンを含む煤状物質を得る。

【選択図】 図1



(2)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

炭化水素原料を不完全燃焼させるか又は炭化水素原料を熱分解することにより、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流を生成させる工程と、

前記工程で得られた高温状態の前記煤状物質含有気流を耐熱性フィルターに通して、前記多環状芳香族化合物を主体とする気化物を分離除去し、前記フラーレンを含む煤状物質を得る工程とを有することを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 2】

請求項 1 記載のフラーレンの製造方法において、前記多環状芳香族化合物を除去した前記煤状物質から、前記フラーレンを分離することを特徴とするフラーレンの製造方法。 19

## 【請求項 3】

請求項 2 記載のフラーレンの製造方法において、前記気化した多環状芳香族化合物を除去した前記煤状物質から、溶媒により前記フラーレンを抽出することによって、前記フラーレンを分離することを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 4】

炭化水素原料を不完全燃焼させるか又は炭化水素原料を熱分解することにより、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流を生成させる工程と、

前記工程で得られた高温状態の前記煤状物質含有気流を耐熱性フィルターに通して、前記多環状芳香族化合物及び前記フラーレンの混合物を主体とする気化物を気流状態で分離する工程とを有することを特徴とするフラーレンの製造方法。 20

## 【請求項 5】

請求項 4 記載のフラーレンの製造方法において、気流状態の前記気化物の温度を、前記フラーレンが固化する温度以下で、前記多環状芳香族化合物の気化温度以上にして、固化した前記フラーレンを回収することを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 6】

請求項 5 記載のフラーレンの製造方法において、前記フラーレンの回収は、別の耐熱性フィルターを用いて行うことを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 7】

請求項 4 記載のフラーレンの製造方法において、前記耐熱性フィルターを通過した気流の温度を下げて、前記多環状芳香族化合物及び前記フラーレンを固化及び／又は液化させて回収することを特徴とするフラーレンの製造方法。 30

## 【請求項 8】

請求項 7 記載のフラーレンの製造方法において、前記多環状芳香族化合物及びフラーレンの混合物から、フラーレンの溶解度が低く、且つ多環状芳香族化合物の溶解度の高い有機溶媒によって多環状芳香族化合物を溶出分離して残った純度を高めたフラーレンを得ることを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 9】

請求項 7 記載のフラーレンの製造方法において、前記多環状芳香族化合物及びフラーレンの混合物を加熱して、前記多環状芳香族化合物を気化分離し、残ったフラーレンを得ることを特徴とするフラーレンの製造方法。 40

## 【請求項 10】

請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載のフラーレンの製造方法において、前記炭化水素原料は、炭素数 6～20 の芳香族炭化水素からなることを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 11】

請求項 1～10 のいずれか 1 項に記載のフラーレンの製造方法において、前記煤状物質含有気流は、旋回流となって配管内を流れることを特徴とするフラーレンの製造方法。

## 【請求項 12】

炭化水素原料から、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状 50

(3)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

物質を含有する気流を生成させるフラーレン生成装置と、  
前記煤状物質を含有する気流から、気体状態の前記多環状芳香族化合物を除く前記フラーレン及び炭素系高分子成分を分離する耐熱性フィルターを備えた分離装置とを有することを特徴とするフラーレンの製造装置。

【請求項 13】

炭化水素原料から、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質を含有する気流を生成させるフラーレン生成装置と、  
前記煤状物質を含有する気流から、気体状態の前記多環状芳香族化合物及び前記フラーレンを通過させて前記炭素系高分子成分を分離する耐熱性フィルターを備えた分離装置とを有することを特徴とするフラーレンの製造装置。

10

【請求項 14】

請求項 12 及び 13 のいずれか 1 項に記載のフラーレンの製造装置において、前記フラーレン生成装置と、前記分離装置との間には、前記フラーレン生成装置から発生する気流を所定温度まで冷やすガス降温手段が設けられていることを特徴とするフラーレンの製造装置。

【請求項 15】

請求項 14 記載のフラーレンの製造装置において、前記ガス降温手段には、周囲を冷却された断面円形の通路と、該通路内を通過する気流を旋回させる気流旋回機構とを備えていることを特徴とするフラーレンの製造装置。

【請求項 16】

請求項 12～15 のいずれか 1 項に記載のフラーレンの製造装置において、前記フラーレン生成装置を減圧し、更に該フラーレン生成装置から前記分離装置まで前記煤状物質を搬送する気体を吸引する減圧装置が設けられていることを特徴とするフラーレンの製造装置。

20

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、新しい炭素材料であるフラーレン、中でも C60、C70、C76、C78、C82、C84 の分子構造を有するフラーレンの製造装置及び製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、炭素数 60、70、84 等の閉殻構造型のカーボンクラスター（球状の巨大分子）という新しいタイプの分子状炭素物質が合成されたが、この特殊な分子構造を有するカーボンクラスターはフラーレンとも称され、その分子骨格を構成する炭素数によって、フラーレン C60、同 C70、同 C84 などと呼ばれている（単に、C60、C70、C84 等とも呼ばれる）。

これらフラーレン類（以下、単に「フラーレン」と言う）は新しい炭素材料であり、また特殊な分子構造から特異な物性を示すことが期待されるので、その性質及び用途開発についての研究が盛んに進められている。フラーレンは例えば、ダイヤモンドコーティング、電池材料、塗料、断熱材、潤滑材、医薬品、化粧品などの分野への応用が期待されている。

30

40

【0003】

フラーレンの製造方法としては、アーク放電法、抵抗加熱法、レーザー蒸発法や燃焼法等が知られているが、ベンゼンなどの環状芳香族炭化水素を不完全燃焼させる燃焼方法は、大量のフラーレンを安価に製造する方法として期待されている。

また、フラーレンを含む煤状物質から、フラーレンを分離する方法としては、溶媒抽出法が知られている。これはフラーレンがベンゼン、トルエン、二硫化炭素等の有機溶媒に溶解するのに対し、その他の煤状物質の多くを占める、いわゆる「煤」である炭素系高分子成分はグラファイトやアモルファスカーボンに似て有機溶媒に溶解しにくい、という性質を利用した方法である。

50

(4)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

## 【0004】

また煤状物質からフラレーンを分離する別の方法としては、高真空下で煤状物質を加熱し、フラレーンを昇華させる方法（昇華法）も知られている。この昇華法は、たとえば400℃以上の高温、0.133Pa（10-3Torr）以下の高真空条件を必要とする特殊な分離方法であり、それに比べ溶媒抽出法は操作が容易なため広く用いられている。更に抽出で得られたフラレーンは、主としてC60とC70を含む溶液であり、この溶液から単一のフラレーンを分離するには、カラムクロマト分離、分別再結晶等の他に、フラレーンを包接化する方法等が適用されている。

## 【0005】

その他、煤状物質からのフラレーン分離方法としては、C60を含有する煤状物質を有機溶媒により抽出して得られた、主としてC60を含む溶液を、活性炭と接触処理した後、得られた処理液から、有機溶媒を分離除去することにより、C60を精製する方法がある（例えば、特許文献1参照。）。

またフラレーンの分離精製装置としては、加熱容器、トラップ、減圧装置を含むバッチ式の分離精製装置が知られている。具体的には、フラレーンを加熱して昇華させるための加熱容器と、該加熱容器に接続されており、昇華したフラレーンを析出させるためのトラップと、加熱容器及びトラップの内部を減圧吸引するための減圧装置とを少なくとも備え、加熱容器、トラップ、減圧装置がこの順序で配設されているものである（例えば、特許文献2参照。）。

## 【0006】

## 【特許文献1】

特開平5-85711号公報

## 【特許文献2】

特開平9-227111号公報

## 【0007】

## 【発明が解決しようとする課題】

しかしこれらの分離精製方法は、いずれもバッチ式であり、少量の煤状物質を対象とした精製技術である。故に、大量の煤状物質を精製対象とする工業的規模でのフラレーン製造には不向きである。

またこの煤状物質には、カーボンブラックに代表される様な、現在、工業的に価値の高い煤である炭素系高分子成分等が大量に含まれている。よって大量の煤状物質から、これら炭素系高分子成分をも有効に利用するためにも、炭素系高分子成分とフラレーンとを出来るだけ効率良く分離できる、フラレーンの製造装置及び製造方法の開発が望まれていた。

## 【0008】

またフラレーンの製造方法においても、フラレーンと共に生成する多環状芳香族化合物が問題となっていた。具体的には例えば、制御された温度・圧力条件下でトルエン等の有機物を不完全燃焼させる方法（燃焼法）によってフラレーンを製造する場合、C60とC70を主とする複数のフラレーンを含んだ煤状物質が生成することが知られている。

## 【0009】

この多環状芳香族化合物は、ベンゾピレンに代表される様に、芳香族化合物の中でも組成的に水素原子の割合が少なく、フラレーン類と類似している。従って、フラレーン類に混在している場合にはフラレーンの反応性を阻害したり、フラレーンの固有の性質に影響を与える可能性がある。また一般的にこれら多環状芳香族化合物は毒物であり、安全性の面から、極力低減する必要がある。

## 【0010】

しかし、フラレーン類と多環状芳香族化合物の溶媒への溶解度を比較すると、一般的に多環状芳香族化合物の溶解度の方が10倍以上高い。その為、煤状物質を溶媒で抽出すると、フラレーン類のみを選択的に抽出することは困難で、煤状物質中の多環状芳香族化合物をも、殆ど抽出液へ同時に抽出してしまう。その為、この抽出液からフラレーンを固体として得るべく、例えば抽出液を濃縮・乾燥したり、抽出液を濃縮して析出した固形分を濾

(5)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

別し乾燥して（主としてフラーレンを含む）固体を得たとしても、この固体中には、通常 0.01～10%程度が多環状芳香族化合物が含まれてしまうという問題がある。

本発明はかかる事情に鑑みてなされたもので、フラーレンの大量製造の際、生成する大量の煤状物質からフラーレンを効率良く分離回収するフラーレンの製造方法及びその製造装置を提供することを目的とする。

【0011】

【課題を解決するための手段】

前記目的に沿う第1の発明に係るフラーレンの製造方法は、炭化水素原料を不完全燃焼させるか又は炭化水素原料を熱分解することにより、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流を生成させる工程と、前記工程で得られた高温状態の前記煤状物質含有気流を耐熱性フィルターに通して、前記多環状芳香族化合物を主体とする気化物を分離除去し、前記フラーレンを含む煤状物質を得る工程とを有する。これによって、煤状物質含有気流から簡単に多環状芳香族化合物を除去できる。

10

【0012】

また、第2の発明に係るフラーレンの製造方法は、第1の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記多環状芳香族化合物を除去した前記煤状物質から、前記フラーレンを分離している。

第3の発明に係るフラーレンの製造方法は、第2の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記気化した多環状芳香族化合物を除去した前記煤状物質から、溶媒により前記フラーレンを抽出することによって、前記フラーレンを分離している。

20

【0013】

第4の発明に係るフラーレンの製造方法は、炭化水素原料を不完全燃焼させるか又は炭化水素原料を熱分解することにより、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流を生成させる工程と、前記工程で得られた高温状態の前記煤状物質含有気流を耐熱性フィルターに通して、前記多環状芳香族化合物及び前記フラーレンの混合物を主体とする気化物を気流状態で分離する工程とを有する。

【0014】

第5の発明に係るフラーレンの製造方法は、第4の発明に係るフラーレンの製造方法において、気流状態の前記気化物の温度を、前記フラーレンが固化する温度以下で、前記多環状芳香族化合物の気化温度以上にして、固化した前記フラーレンを回収している。

30

第6の発明に係るフラーレンの製造方法は、第5の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記フラーレンの回収は、別の耐熱性フィルターを用いて行っている。

第7の発明に係るフラーレンの製造方法は、第4の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記耐熱性フィルターを通過した気流の温度を下げて、前記多環状芳香族化合物及び前記フラーレンを固化及び／又は液化させて回収している。

【0015】

第8の発明に係るフラーレンの製造方法は、第7の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記多環状芳香族化合物及びフラーレンの混合物から、フラーレンの溶解度が低く、且つ多環状芳香族化合物の溶解度の高い有機溶媒によって多環状芳香族化合物を溶出分離して残った純度を高めたフラーレンを得ている。

40

第9の発明に係るフラーレンの製造方法は、第7の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記多環状芳香族化合物及びフラーレンの混合物を加熱して、前記多環状芳香族化合物を気化分離し、残ったフラーレンを得る。

【0016】

第10の発明に係るフラーレンの製造方法は、第1～第9の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記炭化水素原料は、炭素数6～20の芳香族炭化水素からなる。

第11の発明に係るフラーレンの製造方法は、第1～第10の発明に係るフラーレンの製造方法において、前記煤状物質含有気流は、旋回流となって配管（通路）内を流れる。

【0017】

第12の発明に係るフラーレンの製造装置は、第1の発明に係るフラーレンの製造方法を

50



(5)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

適用するフラーレンの製造装置であって、炭化水素原料から、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質を含有する気流を生成させるフラーレン生成装置と、前記煤状物質を含有する気流から、気体状態の前記多環状芳香族化合物を除く前記フラーレン及び炭素系高分子成分を分離する耐熱性フィルターを備えた分離装置とを有する。

#### 【0018】

第13の発明に係るフラーレンの製造装置は、第4の発明に係るフラーレンの製造方法を適用するフラーレンの製造装置であって、炭化水素原料から、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質を含有する気流を生成させるフラーレン生成装置と、前記煤状物質を含有する気流から、気体状態の前記多環状芳香族化合物及び前記フラーレンを通過させて前記炭素系高分子成分を分離する耐熱性フィルターを備えた分離装置とを有する。

#### 【0019】

第14の発明に係るフラーレンの製造装置は、第12、第13の発明に係るフラーレンの製造装置において、前記フラーレン生成装置と、前記分離装置との間には、前記フラーレン生成装置から発生する気流を所定温度まで冷やすガス降温手段が設けられている。

第15の発明に係るフラーレンの製造装置は、第14の発明に係るフラーレンの製造装置において、前記ガス降温手段には、周囲を冷却された断面円形の通路と、該通路内を通過する気流を旋回させる気流旋回機構とを備えている。

第16の発明に係るフラーレンの製造装置は、第12～第15の発明に係るフラーレンの製造装置において、前記フラーレン生成装置を減圧し、更に該フラーレン生成装置から前記分離装置まで前記煤状物質を搬送する気体を吸引する減圧装置が設けられている。

#### 【0020】

##### 【発明の実施の形態】

続いて、添付した図面を参照しつつ、本発明を具体化した実施の形態につき説明し、本発明の理解に供する。

ここに、図1は本発明の第1の実施の形態に係るフラーレンの製造装置の概略構成図、図2は本発明の第2の実施の形態に係るフラーレンの製造装置の概略構成図、図3は煤状物質を加熱した際の重量減少を示したグラフ、図4は同煤状物質を加熱した際に発生したガスの定性分析結果を示すグラフである。

#### 【0021】

図1に示すように、本発明の第1の実施の形態に係るフラーレンの製造装置10は、フラーレン生成装置の一例であるフラーレン生成炉11と、煤状物質からフラーレン及びその他の成分、具体的には条件に応じて多環状芳香族化合物や炭素系高分子成分を分離する分離装置12と、分離装置12を経由したガスを冷却するガス冷却装置13と、ガス冷却装置13によって降温されたガスを吸引する真空ポンプからなる減圧装置14とを有する。以下、これらについて詳しく説明する。

#### 【0022】

この実施の形態では、フラーレンの生成は燃焼法を用いているので、フラーレン生成炉11は、内部の圧力を大気圧に対して減圧条件、好ましくは真空中に近い状態（例えば、20 Torr以上100 Torr以下）としている。このフラーレン生成炉11の側面又は底面に設けた図示しない導入管から導入されたトルエンやベンゼン等のフラーレン炭化水素原料（以下、単に炭化水素原料という）をガス化し、酸素と混ぜて混合ガスとし、フラーレン生成炉11内に導入している。

#### 【0023】

そして、フラーレン生成炉11内には、炭化水素原料を不完全燃焼させるためのバーナー15を備える。バーナー15には炭素質原料と酸素との混合ガスが供給される。このような構造により、連続的に、フラーレンを含む煤状物質を含む気流（煤状物質含有気流）を製造することができる。この実施の形態では、このフラーレン生成炉11から発生する高温の煤状物質含有気流から、フラーレンを分離して、連続的かつ大量のフラーレンの製造

(7)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

が行われている。

#### 【0024】

フラーレン生成炉11の下流には、ガス降溫手段16を介して分離装置12が設置されている。このガス降溫手段16は、この実施の形態では、周囲を所定温度に冷却されたパイプ（配管、通路）17と、このパイプ17内に斜め接線方向から気流を吹き込む導入口（図示せず）とを有し、高温で乱流状態の煤状物質含有気流がこのパイプ17内を通過することによって、周囲から抜熱され、所定の温度（例えば、多環状芳香族化合物の液化温度以上でフラーレンの固化温度以下、又はフラーレンの固化温度以上で分離装置12の耐熱温度以下）まで降溫されて、分離装置12内に送られている。

#### 【0025】

なお、パイプ17内に旋回流を発生させる導入口は、入口側のフランジ18に設けてもよいし、フラーレン生成炉11に接続される排気管19に更に複数に分岐管を接続し、この分岐管を、パイプ17の上流側の位置で斜め接線方向に接続してもよい。このように構成することによって、通過する気流がパイプ17内の内側面に積極的に接するので、効率的に冷却される。また、気流には気化が困難な炭素系高分子成分（カーボンブラックを含む）を多量に有し、通常のストレートな気流の流れでは、パイプ17内の内壁部分の流速が遅くなって、パイプ17内が徐々に閉塞される傾向にあるが、以上のように気流旋回機構を設けることによって、内壁近傍に積極的に気流を流すので、固形物の堆積を減ずることができる。

#### 【0026】

また、ガス降溫手段16として、パイプ17を通過する煤状物質含有気流を乱流状態にして通過させることによって、煤状物質含有気流の温度を下げることもできる。この場合は、パイプ17内に煤状物の閉塞が発生しやすいので、できる限り通過するガスの速度を増すのが望ましい。

#### 【0027】

分離装置12は、フラーレン生成炉11から発生する煤状物質含有気流中の固形分と気流分を分離するためのもので、内部に耐熱性フィルター20を備える。耐熱性フィルター20の耐熱温度はより高いことが好ましいが、実際は、気化した多環状芳香族化合物を通過させてフラーレン及び炭素系高分子成分（煤状物）を回収する場合には、ガスの温度に応じて300～500℃（より好ましくは、400～500℃）の耐熱温度で十分であり、気化したフラーレン及び多環状芳香族化合物を通過させて、炭素系高分子成分を回収する場合には、600～750度の耐熱温度のフィルターを使用する必要がある。

#### 【0028】

分離装置12の構造は、通常の集塵機等に使用されるバグフィルター構造となっており、このバグフィルターが前記した耐熱性フィルター20によって構成されている。このような耐熱性フィルター20としては例えば、日本ボール社製焼結金属フィルターや富士フィルター社製焼結金属フィルター等が挙げられる。フィルター目開きの大きさは、フラーレンを生成させる燃焼条件や煤状物質の性状によって適宜選択する。

#### 【0029】

分離装置12には、その上部に定期的に付着した固化物（例えば、炭素系高分子成分とフラーレン又は炭素系高分子成分）を除去するパルスジェット機構21が設けられている。このパルスジェット機構21は、高圧の不活性ガス（例えば、窒素やアルゴン）等を貯留するタンク22と、電磁弁23とを有し、電磁弁23を定期的に短時間パルスのように開けることによって、耐熱性フィルター20内にガスを入れ、周囲に付着した固化物を下方に落下させ、排出弁24を開けて外部に排出できるようになっている。そして、分離装置12の上部には、耐熱性フィルター20を通過したガスを外部に排出するガス出口25が設けられている。

#### 【0030】

図2はこのような分離装置12と同一の分離装置27を直列2段に重ねたものであり、途中に別のガス降溫手段28を配置している。なお、図2に示す本発明の第2の実施の形態

(8)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

に係るフラーレンの製造装置 29 において、前記したフラーレンの製造装置 10 と同一の構成要素は同一の番号を付してその詳しい説明を省略する。

この分離装置 27 に、例えば分離装置 12 を出たガスの温度（例えば、600℃）をガス降温手段 28 によって更に（例えば、400℃）に下げて供給すると、分離装置 12 を通過した気体状のフラーレンはガス降温手段 28 によって固化し、分離装置 27 によって回収される。一方、凝固温度の更に低い多環状芳香族化合物は、更に分離装置 27 も通過することになる。

#### 【0031】

分離装置 27 のガス出口 25（第 1 の実施の形態に係るフラーレンの製造装置 10 においては、分離装置 12 のガス出口 25 となる）には、ガス冷却装置 13 が設けられている。<sup>19</sup>  
このガス冷却装置 13 は通常の熱交換器と、同一又は近似した構造となって、気流内に含まれる多環状芳香族化合物が液化し、下部のドレンから排出されるようになっている。なお、ガス冷却装置 13 に流入するガス温度が 500℃以上ある場合には、ガス内に気化されたフラーレンを含む。この場合、ガス冷却装置 13 がガスを 200～100℃程度に冷却すると、フラーレンの固化物と多環状芳香族化合物の液化物を得る。

#### 【0032】

このガス冷却装置 13 に後続する減圧装置 14 は通常の真空ポンプからなっている。なお、フラーレンの昇華温度は真空度によっても変化するので、供給する炭化水素原料、酸素、不活性ガスの量から、最も効率的にフラーレンを回収できる圧力になるように減圧装置 14 を制御する。<sup>20</sup>

なお、ガス冷却装置 13 の前に、更に、温度を下げることによって生成したフラーレンや多環状芳香族化合物を回収する特別な装置を設けて、ガス冷却装置 13 は減圧装置 14 に通ずる気体を所定温度以下に冷却するためのみに使用してもよい。

#### 【0033】

続いて、本発明の一実施の形態に係るフラーレンの製造方法について述べる。

#### 工程（1）

本発明の工程（1）においては、フラーレンを含む煤状物質含有気流を得る。この際、フラーレンは原料となる炭化水素（炭化水素原料）をフラーレン生成炉 11 を用いて不完全燃焼させる燃焼法によって行うが、場合によっては、高熱下に炭化水素原料を分解させる熱分解法によって製造することもできる。<sup>30</sup>

フラーレン製造の際には、多環状芳香族化合物（PAH）や炭素系高分子成分（カーボンブラックを含む煤状成分）も同時に生ずるので、この煤状物質含有気流は、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含有する煤状物質を含む気流（煤状物質含有気流）となる。

#### 【0034】

燃焼法はフラーレンの大量生産に向き、またフラーレン合成域における最高温度が約 2000℃程度と他の方法と比べて比較的低温であり、またフラーレンが気相の状態が存在し、フラーレン以外の、特に煤状物質の多くを占める炭素系高分子成分が固体の状態で存在している温度領域が特定しやすく、フラーレンの分離を効率的に行えるので好ましい。<sup>40</sup>  
燃焼法によりフラーレンを製造する場合、圧力条件としては大気圧に対して減圧下で行うのが一般的であり、減圧度は適宜選択すればよい。具体的な圧力条件としては、例えば 20～100 Torr（更に好ましくは、30～50 Torr）となるように、減圧装置 14 の排気量が調整されている。

フラーレン生成炉 11 内の温度条件としては、先述した圧力条件に応じて適宜選択すればよいが、中でも 1600～2000℃が好ましく、特に 1700～1900℃であることが好ましい。

#### 【0035】

フラーレンの原料となる炭化水素としては、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、メチルナフタレン、アントラセン、フェナントレン等の炭素数 6～20 の芳香族炭化水素が好適に用いられる。また、炭化水素原料としては、これらの芳香族炭化水素に併用し<sup>50</sup>

(9)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

てヘキサン、ヘプタン、オクタン等の脂肪族炭化水素を用いても良い。

#### 【0036】

燃焼法において用いる炭化水素原料は、同時に熱源としても作用する。即ちこの炭化水素原料は酸素と反応して発熱してフラレーンの生成が可能となる温度に上昇させると共に、炭化水素原料が脱水素されることにより、フラレーン骨格を形成するための炭素ユニットを生成するものである。炭素ユニットは一定の圧力、温度条件で集合してフラレーン類を形成する。

#### 【0037】

燃焼法に於いて用いる酸素の使用量としては、炭化水素原料の種類によっても若干異なるが、炭化水素原料中の炭素の量と使用する酸素のモル比、C/O比が0.7～1.3であることが好ましく、1.0～1.2であることが更に好ましい。

燃焼法における反応系には、酸素以外に、フラレーンに対して不活性ガスを存在させていてもよい。本実施の形態において不活性ガスとは、フラレーン類と実質的に反応しない気体を意味する。不活性ガスの種類としては、ヘリウム、ネオン、アルゴン、窒素及びこれらの混合物が挙げられる。

#### 【0038】

燃焼法により得られた煤状物質含有気流中には、フラレーン及び多環状芳香族化合物が含まれる。これら以外の残部は、通常、グラファイト構造を持つ炭素グラファイト構造を骨格として若干の水素原子を有する、高分子の炭化水素やカーボンブラック等（炭素系高分子成分）である。

工程（1）にて得られる煤状物質含有気流には、フラレーン類が5重量%以上含まれていることが好ましく、更には10%以上、特に15%以上含まれていることが好ましい。

また、本実施の形態により製造されるフラレーン類は、フラレーン構造を有していれば炭素数に制限はないが、通常は炭素数60～84のフラレーンであり、中でもC60とC70の割合が全フラレーン中において50%以上であることが好ましく、更には70%以上、特に80%以上であることが好ましい。

#### 【0039】

工程（1）で得られる煤状物質含有気流は、通常、速度が緩やかで、300℃以上の温度を有するものである。この気流をそのまま次の工程（2）へ供しても良いし、例えば先述の不活性ガス流を供給して気流速度を上昇させ、工程（2）での効率を高めても良いし、また必要に応じてこの煤状物質含有気流を加熱しても良い。

この際、煤状物質含有気流の温度は、フラレーン及び／又は多環状芳香族化合物が気体で存在できる温度以上であればよく、具体的には400℃以上であることが好ましい。また煤状物質含有気流の温度が高すぎるとフラレーン製造装置への負荷が大きく、温度上昇に見合う効果の増加が少なくなるので、2000℃以下、中でも1500℃以下であることが好ましい。

なお、本実施の形態における多環状芳香族化合物とは、少なくとも一つ以上の芳香環を有し、2環以上が縮合している芳香族化合物を示す。多環状芳香族化合物の具体例としては、ナフタレン、アントラセン、フェナントレン、ベンゾピレン等が挙げられる。

#### 【0040】

工程（2）

工程（2）では、先述の工程（1）で得られた、フラレーン、多環状芳香族化合物及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流から、フラレーン及び／又は多環状芳香族化合物を気体状態で分離する。

分離の方式としては、以下の工程（2-1）、工程（2-2）が挙げられる。

工程（2-1）

煤状物質含有気流から、気体状態で多環状芳香族化合物を分離する。次にフラレーンと炭素系高分子成分との混合物から、フラレーンを分離する方法。

工程（2-2）

気体状態のフラレーンと気体状態の多環状芳香族化合物を、炭素系高分子成分等の煤状物

(10)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

質に含まれる他の物質と分離し、次にフラーレンと多環状芳香族化合物との混合物から、フラーレンを分離する方法。

これらの工程について説明する。

#### 【0041】

##### 工程(2-1)

図1に示すフラーレンの製造装置10を用いて、フラーレンの製造を行う。そして、フラーレン生成炉11から発生する煤状物質含有気流をガス降温手段16を通じて温度を下げて、分離装置12内に流す。

この工程では、煤状物質含有気流から、気体状態で多環状芳香族化合物を分離する。この際の分離条件としては、多環状芳香族化合物が気体状態で存在し、フラーレンを含む残りの炭素系高分子成分が固体状態(例えば、粉体)であれば、任意の温度、圧力条件を適宜選択すればよく、経済性を考えて、最適な条件で実施すればよい。

一般的に圧力は100~2×10<sup>5</sup>Paが好ましく、更には1000~1.4×10<sup>5</sup>Paであること好ましい。常圧では装置が簡単になるメリットがあり、減圧下では分離条件温度が低くても多環状芳香族化合物が気体状態で存在するので分離が可能であり、経済的メリットがある。

#### 【0042】

また分離条件温度は、圧力にもよるが、好ましくは200℃以上570℃以下である。多環状芳香族化合物が気体状態で存在できる温度は、当然、圧力によって変化するので、分離条件温度は適宜選択すればよい。温度が低すぎると多環状芳香族化合物が固体として析出する場合があります、逆に温度が高すぎるとフラーレンも気体状態となるので多環状芳香族化合物と共に分離されてしまい、フラーレンの回収率が低下する場合があります。この制御は、分離装置12内に入るガス温度を測定しながらガス降温手段16を制御することによって行う。

#### 【0043】

多環状芳香族化合物の分離に際しては、工程(1)で得られた煤状物質含有気流をそのまま用いても良いが、先述のような不活性ガスを更に添加して全体温度を下げてよい。中でも分離装置12内における気体中の酸素含有量を10体積%以下とするのが好ましく、更には5体積%以下、特に1体積%とするのが好ましい。酸素含有量が多いとフラーレンの酸化物が生成する場合があります、フラーレンの収率が低下する場合があります。

#### 【0044】

分離装置12で分離された多環状芳香族化合物は、気流に伴伴されて、例えば、図1には図示しない析出装置(分離装置12とガス冷却装置13との間に配置される)にて温度が下げられることによって、固体又は液体の多環状芳香族化合物として回収すればよい。この析出装置は、分離装置12と同一装置内に設けても、また別の装置として設けてもよい。この多環状芳香族化合物の回収は、バッチ式又は連続式のいずれでもよい。析出した多環状芳香族化合物の回収は、そのまま固体又は液体として、又は溶媒に溶解して回収してもよい。

#### 【0045】

多環状芳香族化合物の析出、回収の方法は、従来公知の、気体状態物質を液化(又は固化)させて回収する技術を用いればよい。例えば、冷却した回転ドラムに気体状態の多環状芳香族化合物を含有するガスを接触させて多環状芳香族化合物を析出させ、間欠的もしくは連続的にスクレーパーで掻き取り回収する方法が挙げられる。また、回転ドラムに付着した多環状芳香族炭化水素を有機溶媒により溶解し除去・回収してもよい。

#### 【0046】

また別の方法としては、気体状態の多環状芳香族化合物を、水又は有機溶媒のスプレーゾーンを通過させるか、又は気体状態の多環状芳香族化合物を含むガスを、水又は有機溶媒中へ吹き込むことでガスを冷却し、多環状芳香族化合物を析出(あるいは有機溶媒に溶解)させて回収する方法が挙げられる。この際、水中に多環状芳香族化合物を析出させて回収した際には、更に有機溶媒で多環状芳香族化合物を抽出すればよい。

(11)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

## 【0047】

工程(2-1)で多環状芳香族化合物を分離した後、フラレーンと炭素系高分子成分の混合物からフラレーンを分離する。

フラレーンと炭素系高分子成分とを分離する方法は特に制限はないが、例えばフラレーンと炭素系高分子成分を含む煤状混合物を抽出溶媒と混合して、フラレーンが溶解した抽出液を得る方法(工程(2-1-1))と、フラレーン及び炭素系高分子成分を含む煤状混合物を、不活性ガス等の存在下で加熱し、フラレーンを昇華分離する方法(工程(2-1-2))が挙げられる。

## 【0048】

工程(2-1-1)

10

フラレーンを溶解した抽出液を得る場合の抽出溶媒としては、好ましくは芳香族炭化水素を含む溶媒が用いられる。

芳香族炭化水素としては、分子内に少なくとも1つのベンゼン核を有する炭化水素化合物であり、具体的にはベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、*n*-プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン、*n*-ブチルベンゼン、*sec*-ブチルベンゼン、*tert*-ブチルベンゼン、1, 2, 3-トリメチルベンゼン、1, 2, 4-トリメチルベンゼン、1, 3, 5-トリメチルベンゼン、1, 2, 3, 4-テトラメチルベンゼン、1, 2, 3, 5-テトラメチルベンゼン、ジエチルベンゼン、シメン等のアルキルベンゼン類、1-メチルナフタレン等のアルキルナフタレン類、テトラリン等が挙げられる。

これらのうち1, 2, 3-トリメチルベンゼン、1, 2, 4-トリメチルベンゼン及びテ  
トラリンが好ましい。 20

## 【0049】

抽出溶媒としては上述した芳香族炭化水素の他に、更に脂肪族炭化水素や塩素化炭化水素等の有機溶媒を、単独又はこれらのうち2種以上を任意の割合で用いてもよい。

脂肪族炭化水素としては、環式、非環式等、任意の脂肪族炭化水素が使用できる。環式脂肪族炭化水素の例としては、単環式、多環式のもの挙げられ、例えば単環式ではシクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、シクロオクタンなどが挙げられる。また単環式脂肪族炭化水素の誘導体であるメチルシクロペンタン、エチルシクロペンタン、メチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン、1, 2-ジメチルシクロヘキサン、1, 3-ジメチルシクロヘキサン、1, 4-ジメチルシクロヘキサン、イソプロピルシクロヘキサン、*n*-プロピルシクロヘキサン、*t*-ブチルシクロヘキサン、*n*-ブチルシクロヘキサン、イソブチルシクロヘキサン、1, 2, 4-トリメチルシクロヘキサン、1, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン等も挙げられる。多環式としては、デカリンなどが挙げられる。

30

非環式脂肪族炭化水素の例としては、*n*-ペンタン、*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、イソオクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン、*n*-ドデカン、*n*-テトラデカンなどが挙げられる。

## 【0050】

塩素化炭化水素としては、ジクロロメタン、クロロフォルム、四塩化炭素、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1, 2-ジクロロエタン、1, 1, 2, 2-テトラクロ  
ロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、1-クロロナフタレンなどが挙げられる。

40

その他、炭素数6以上のケトン、炭素数6以上のエステル類、炭素数6以上のエーテル類、二硫化炭素等を用いても良い。

## 【0051】

抽出溶媒におけるフラレーンの溶解度が低すぎるとフラレーンの抽出効率が低下するので、フラレーンの溶解度としては5 g/リットル以上であることが好ましく、更には10 g/リットル以上、特に15 g/リットル以上であることが好ましい。また、工業的観点から、これらの抽出溶媒の中でも常温液体で沸点が100~300℃、中でも120~250℃のものが好適である。

50

(12)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

## 【0052】

抽出溶媒は、フラーレンを十分に抽出できるだけの量を用いる必要がある。通常、煤状混合物中のフラーレン含有量に対し、5～400重量倍量、経済性を考えると、40～200重量倍量程度使用するのが好ましい。抽出は、バッチ式、セミ連続式、連続式、又はそれらの組み合わせ等、形式、装置は特に限定されない。

なお、煤状混合物には通常5～30重量%のフラーレンが含まれているが、抽出効率の観点から、フラーレンに対して用いる抽出溶媒の量を上述した範囲とするのが好ましいことから、抽出操作に先立って、煤状物質の一部を分析して、煤状物質中のフラーレン含有量を測定しておくのが好ましい。

## 【0053】

19

抽出装置としては攪拌混合槽が好適に使用できる。抽出の際、容器内の圧力は特に制限はなく、常圧で実施すればよい。抽出時の温度としては通常-10～150℃であり、好ましくは5～80℃であり、更に好ましくは30～50℃である。これら範囲であれば抽出効率向上の面から好ましいが、抽出効率は温度依存性が小さいのでエネルギーコスト的に常温程度で行うのが有利である。

抽出工程においては、更に必要に応じて、抽出液に超音波等を照射しながら抽出を行うと、抽出時間が短くなるので好ましい。

## 【0054】

こうして得られた抽出液には、フラーレンが溶解しており、また、多環芳香族化合物は前の工程（工程（2-1））にて既に除去されているので、抽出液から用いた有機溶媒等を留去すること等により、高純度のフラーレンを得ることが出来る。

尚、フラーレンを抽出した後に残ったスラリーには、工業上有用な炭素系高分子成分が含まれている。よってこのスラリーから、未溶解物を濾別し、再利用することが可能である。濾別は、減圧濾過、加圧濾過、重力濾過、フィルター濾過、又はそれらの組み合わせ等、方法、装置は特に限定されないが、中でも加圧濾過が好ましい。

## 【0055】

## 工程（2-1-2）

多環芳香族化合物が分離された、フラーレンと炭素系高分子成分を含む煤状混合物は、多環芳香族化合物を気体状態で分離した際の温度よりも、高温条件下に付すことにより、フラーレンを気体状態で煤状混合物から分離できる。一般的に、多環芳香族化合物を分離した後、フラーレンは固体となっているので、煤状混合物を加熱することでフラーレンを昇華し分離できる。

## 【0056】

昇華する際の条件は、常圧もしくは5000Pa程度の減圧下で実施する。常圧では装置が簡単になるメリットがあり、減圧下ではフラーレンの昇華温度が低くなるメリットがある。経済性を考えて、最適な条件で実施すればよい。窒素又はヘリウム等の不活性ガスを、煤状混合物1gに対し、前の工程から持ち込まれる不活性ガス量との合計が1～10000ml/分程度、好ましくは5～5000ml/分程度であることが好ましい。不活性ガスの流通は連続的であっても間欠的であってもよい。

## 【0057】

40

置換が十分に実施されないと、フラーレンの酸化物が生成する場合がある。昇華を実施する際の不活性ガスは、予熱しても良いし、予熱しなくても良い。昇華に用いる装置は、バッチ式、固定床型、流動層型、連続型等特に限定はしない。

この工程では、煤状混合物又はこれを含む気流から、気体状態でフラーレンを分離する。この際の分離条件としては、フラーレンが気体状態で存在できれば、任意の温度、圧力条件を適宜選択すればよく、経済性を考えて、最適な条件で実施すればよい。

一般的に圧力は5000Pa程度の減圧下で行うのが好ましい。常圧では装置が簡単になるメリットがあり、減圧下では分離条件温度が低くてもフラーレンが気体状態で存在するので分離が可能であり、経済的メリットがある。

## 【0058】

59

(13)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

また分離条件温度は、圧力にもよるが、通常400℃～1400℃、更には600～1200℃、特に800℃～1100℃であることが好ましい。フラーレンが気体状態で存在できる温度は、当然、圧力によって変化するので、分離条件温度は適宜選択すればよい。温度が低すぎるとフラーレンが充分気体状態とならないので収率が低下する場合があります、逆に温度が高すぎると経済的に不利になるばかりか、僅かな酸素が存在している場合などは、この酸素がフラーレンと反応して酸化物となってしまう、フラーレンの収率が低下する場合があります。

【0059】

工程(2-2)

次に、気体状態のフラーレンと、気体状態の多環状芳香族化合物を、炭素系高分子成分等の煤状物質に含まれる他の物質と分離し、次にフラーレンと多環状芳香族化合物との混合物から、フラーレンを分離する方法について説明する。

この工程(2-2)では、工程(1)で得られた、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質含有気流を、先述の工程(2-1-2)の条件下に付すことで、フラーレンと多環状芳香族化合物とを、この煤状物質含有気流から気体状態で分離することが出来る。この際の実分離条件は、先述の工程(2-1-2)と同様である。この様にして分離された、気体状態の、フラーレンと多環状芳香族化合物は、一般的にこれらを冷却して固体状又は液体状の混合物とする。ついで、例えば以下に示す工程(2-2-1)、工程(2-2-2)及び工程(2-2-3)の様な方法によって、フラーレンと多環状芳香族化合物とを分離すればよい。

【0060】

工程(2-2-1)

工程(2-2)を経て、気体状態で得られたフラーレン及び多環状芳香族化合物を、冷却してこれらの固体状又は液体状混合物とし、この混合物を加熱して多環状芳香族化合物を気体状態で分離する工程。

工程(2-2-2)

工程(2-2)を経て気体状態で得られたフラーレン及び多環状芳香族化合物を冷却し、多環状芳香族化合物を気体状態としたまま、フラーレンを固体として分離する工程。

工程(2-2-3)

工程(2-2)を経て、気体状態で得られたフラーレン及び多環状芳香族化合物を、冷却してこれらの固体状又は液体状混合物とし、この混合物から、フラーレンの溶解度が低く、且つ多環状芳香族化合物の溶解度の高い有機溶媒によって多環状芳香族化合物を抽出し、分離する工程。

これら各工程について説明する。

【0061】

工程(2-2-1)

工程(2-2-1)においては、図1に示すフラーレンの製造装置10を用い、気体状態で得られたフラーレン及び多環状芳香族化合物(気体)を、冷却してこれらの固体状又は液体状混合物とする。そしてこの混合物を加熱し、フラーレンと多環状芳香族化合物を分離する。

この分離の条件としては、多環状芳香族化合物を気体状態で分離できれば、任意の温度、圧力をとることができる。例えば先述の工程(2-1)における、煤状物質含有気流から気体状態で多環状芳香族化合物を分離する際と同様の温度、圧力条件下で、多環状芳香族化合物を気体状態で分離すればよい。この際の温度、圧力条件は、経済性を考えて、最適な条件で実施すればよい。

中でも、先述の工程(2-1)における、煤状物質含有気流から気体状態で多環状芳香族化合物を分離する際と同様の温度、圧力条件における好ましい範囲とすることが、この工程(2-2-1)においても好ましい。

【0062】

工程(2-2-2)



(14)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

工程(2-2-2)においては、気体状態で得られたフラレーン及び多環状芳香族化合物(気体)を、多環状芳香族化合物だけが気体状態となるように、つまりフラレーンが固体状となり、気体状態の多環状芳香族化合物と分離できる状態にまで冷却し、フラレーンと多環状芳香族化合物とを分離する。

この方法により、フラレーンを分離する場合には、具体的には図2に示すフラレーンの製造装置29を用いる。即ち、分離装置12内を通過させる気体の温度を例えば500～750℃程度として、多環状芳香族化合物とフラレーンを気化状態で通過させて、炭素系高分子成分を分離装置12が回収する。そして、分離装置12を通過した気体の温度をガス降溫手段28で下げて、例えば300～400℃として、分離装置27を通過させる。この状態では多環状芳香族化合物は気体であるので、そのまま分離装置27を通過し、フラレーンを主体とする成分が分離装置27で回収される。多環状芳香族化合物については、先に述べた方法で回収することになる。

#### 【0063】

この分離の条件としては、フラレーンが固体状となり、且つ多環状芳香族化合物が気体状態で存在できれば、任意の温度、圧力をとることができる。例えば先述の工程(2-1)における、煤状物質含有気流から気体状態で多環状芳香族化合物を分離する際と同様の温度、圧力条件下で、フラレーンを固体状として、多環状芳香族化合物を分離すればよい。この際の温度、圧力条件は、経済性を考えて、最適な条件で実施すればよい。

中でも、先述の工程(2-1)における、煤状物質含有気流から気体状態で多環状芳香族化合物を分離する際と同様の温度、圧力条件における好ましい範囲とすることが、この工程(2-2-2)においても好ましい。

#### 【0064】

##### 工程(2-2-3)

この工程(2-2-3)では、フラレーン及び多環状芳香族化合物を含む固体状又は液体状混合物から、フラレーンの溶解度が低く、且つ多環状芳香族化合物の溶解度の高い有機溶媒を抽出溶媒として用い、多環状芳香族化合物を抽出する工程である。

この抽出溶媒、つまりフラレーン類の溶解度が低い溶媒(以下、貧溶媒と称することがある)の具体例としてはメタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、グリセリン等の炭素数1～4のアルコール類；アセトン、メチルエチルケトン等の炭素数3～5のケトン類；テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、ジオキサン等の炭素数2～5のエーテル類；N、N-ジメチルホルムアミド等の炭素数3～5のアミド類及びこれらを含む混合溶媒が挙げられる。これらのうち、アルコール類が好ましく、なかでも炭素数3以下のものが好ましく、特に2-プロパノール(イソプロピルアルコール)が好ましい。

#### 【0065】

これら貧溶媒のフラレーンC60の溶解度としては、1g/リットル以下であることが好ましく、更には100mg/リットル以下、特に50mg/リットル以下であることが好ましい。

貧溶媒は直接、先述の固体状又は液体状混合物と接触させても良いが、一般的には、この混合物を一旦、フラレーン及び多環状芳香族化合物の双方が高い溶解性を示す有機溶媒に溶解して溶液とし、これに貧溶媒を添加してフラレーンを析出させる。

#### 【0066】

この際の貧溶媒の使用量は、この溶液調整に用いた有機溶媒量に対し、0.1～50重量倍量、中でも1～30重量倍量程度であることが好ましい。貧溶媒の量が少ないと、フラレーンの析出量が少なくなり、回収できるフラレーンが減少する。多すぎると、これらの操作を行う容器容量が大きくなり、経済的にロスが発生する。

貧溶媒を混合する温度としては、通常、-20～150℃であり、中でも-10～100℃、更には10～80℃、特に30～60℃であることが好ましい。

貧溶媒を混合することにより析出したフラレーンは、濾過等により回収すればよい。

一方、多環状芳香族炭化水素の殆どは析出せずに溶媒中に溶解しているので、フラレーン類を取り除いた後の溶液は、その溶媒を留去すること等により多環状芳香族化合物を固体

(15)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

として回収することが出来る。

なお、この場合には、フラーレンの製造装置 10 を用いることになる。

【0067】

【実施例】

以下に実施例を示し、本発明を更に具体的に説明するが、本発明の要旨を超えない限り、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0068】

(実施例 1)

トルエンを原料として燃焼法により得られた煤状物質 3.8 mg を、熱重量測定装置 (セイコー社製 TGA6300) を用い、乾燥窒素ガス 100 cc/分中で、室温より 20℃ 毎分にて 1150℃ まで加熱し、重量の変化を測定した。

得られた結果を図 3 に示す。

図 3 において、左縦軸は、重量 3.8 mg に対する減量率を、右縦軸は原料率の変化率を、横軸は加熱温度を示す。

図 3 に示した、重量減少を示すグラフ、及び重量変化率を示すグラフから明らかな通り、温度が 100℃ 以上となると重量が徐々に減少し、400℃ 付近から重量減少が加速されていることが判る。そして 500℃ 以上の高温領域に於いて煤状物質の重量が急激に減少する。これはフラーレンの昇華温度が 400～800℃ である事を考慮すると、煤状物質中の多量のフラーレンが昇華することで、煤状物質の急激な重量減が生じたことが判る。

【0069】

更に、四重極形質量分析装置 (日本電子製オートマス AM2-15 型) を用い、煤状物質を加熱した際に発生したガス成分の定性分析を以下の条件で行った。結果を図 4 に示す。

測定法 : EI 法

ファーンズ部温度 : 290℃

トランスファーチューブ温度 : 285℃

GC オープン温度 : 285℃

インターフェース温度 : 285℃

イオン化室温度 : 260℃

フォトマル電圧 : 450 V

イオン化電圧 : 70 eV

イオン化電流 : 300  $\mu$  A

マスレンジ : 10～400 amu

スキャンスピード : 1000 msec

【0070】

図 4 において、縦軸はイオンスペクトルの相対強度を、横軸は加熱温度を示す。図 4 より、煤状物質を加熱して発生したガス中には、ベンゼン (分子量 78)、トルエン (分子量 92)、キシレン (分子量 106) 等の芳香族化合物や、ナフタレン (分子量 128)、アントラセン (分子量 178) 等の多環状芳香族化合物の存在を示すピークが、フラーレンの昇華温度より低い温度範囲に於いて確認された。これによって、ベンゼン等の芳香族化合物はもちろん、多環状芳香族化合物も気体状態で分離できることが判る。

以上の実施例により、燃焼法によって得られた、フラーレン、多環状芳香族化合物、及び炭素系高分子成分を含む煤状物質から、フラーレン及び/又は多環状芳香族化合物を気体状態で分離出来る。よってこのような煤状物質を含有する気流から、フラーレン及び/又は多環状芳香族化合物を、連続的に、気体状態で分離することが可能であり、そしてこの煤状物質を含む気流から、連続的にフラーレンを分離可能であることが判る。

【0071】

(実施例 2、3)

次に、本発明の作用効果を確認するために行った実施例 2 について説明する。この実施例においては、図 1 に示すフラーレンの製造装置 10 を使用した。なお、炭化水素原料としてはトルエン (純度は高い) を使用し、トルエンと酸素をバーナー 15 に供給する前に、

(16)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

ガス化したトルエンの供給路及び酸素の供給路にそれぞれ流量調節器A、Bを設け、更にそれぞれの流量調節器A、Bを通過したトルエン及び酸素を混合する混合室を設け、予め所定量で所定割合のトルエン及び酸素をバーナー15に供給できる構造としている。この流量調節器A、Bを調整することによって、トルエンが燃焼する際の酸素に対するトルエン中の炭素の元素組成比(C/O比)を所定比に調整した混合ガスを作製し、この作製した混合ガスをバーナー15の蓄圧室内で保持して、バーナー15の吐出口から吐出させることで、混合ガスを炉内で安定的に供給している。

【0072】

そして、減圧装置(真空ポンプ)14を作動させて、フラーレン生成炉11内を排気して、フラーレン生成炉11の内部を、所定の減圧状態に保持している。これによって、バー 19  
ナー15から吐出した混合ガスをこの減圧状態で不完全燃焼させながら、生成した煤状物質含有気流を排気管19及びガス降温手段16を介して分離装置12へ供給している。分離装置12を経た気流は、一旦ガス冷却装置13によって十分に低い温度に冷却されて減圧装置14に送られる。ここで、30はバルブを示す。

【0073】

次に、本発明の実施例2及び実施例3の手順について詳細に説明する。

トルエンが燃焼する際の酸素に対するトルエン中の炭素の元素組成比(C/O比)を0.7以上かつ1.3以下、好ましくは1.0以上かつ1.2以下になるように、各流量調節器A、Bでトルエン量及び酸素量をそれぞれ調整して混合室内に導入して混合ガスを作製 20  
する。

次いで、減圧装置14を作動させてフラーレン生成炉11内を排気しながら、バーナー15の吐出部から混合ガスを、例えば、70~100cm/秒の速度でフラーレン生成炉11内に吐出して燃焼させる。このとき、フラーレン生成炉11内が例えば、20 Torr 以上かつ100 Torr 以下、好ましくは30 Torr 以上かつ50 Torr 以下の減圧状態に維持されるように、減圧装置14の排気量を調節する。

【0074】

トルエンと酸素の混合ガスは、炉内に供給される前に十分に予混合された状態であるため、トルエンの燃焼が均一に進行して、フラーレン生成炉11内の温度を均一かつ高温(例えば、1600~2000℃、好ましくは1700~1900℃)にすることができる。 30  
また、C/O比炉内圧力を所定の範囲に制御しているため、未燃焼のトルエンが加熱されて分解する際に煤状物質の生成が抑制されて、フラーレン前駆体が多量に生成する。このため、フラーレンの生成速度が向上して、フラーレンの収率を上げることができる。

【0075】

ここで、燃焼ガスの温度を更に上げるために、混合ガスをフラーレン生成炉11内に吐出する前に予熱することが好ましい。方法としては、例えば、配管に電気や熱媒のヒーターを巻いて混合ガスが通過する際に加熱する。この予熱の温度は混合ガスが気体状態を維持する温度以上であればよく、フラーレンの収率を上げるためには極力高温の方が好ましい。ただし、自然発火による爆発等を防止するため、炭素含有化合物、即ちトルエンの自己着火温度未満にしておく。

このフラーレンの製造装置10を用いて実験した例を、従来例と比較しながら表1に示す 40  
。

【0076】

【表1】

(17)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

	実施例 2	比較例	実施例 3
トルエン流量 mol/hr	68.7	68.7	171.75
等量比	2.95	2.95	2.95
炉内圧力 Toor	40	40	40
分離装置入口温度 °C	570	90	630
煤状物質生成量 g/hr	200	230	500
煤状物質中の フラレーン %	21	20	
煤状物質中の多環状 芳香族化合物 ppm	57.6	348.6	
分離装置で捕集された煤状物質 中のフラレーン %			14.5
ガス冷却装置内で回収された煤 状物質中のフラレーン %			98.5

10

20

## 【0077】

なお、実施例 2、3 及び比較例 1 における分離装置入口側温度は、ガス降温手段 16 を制御することによって、煤状物質含有気流の温度を制御した。

煤状物質中のフラレーンの量は、液体クロマトグラフィーによって測定し、煤状物質中の多環状芳香族化合物の量は、ガスクロマトグラフィーによって測定した。

表 1 から分かるように、分離装置 12 に供給される煤状物質含有気流の温度を 570 °C にすると（実施例 2 の場合）、煤状物質含有気流中の多環状芳香族化合物が気化して耐熱性フィルター 20 を通過し、フラレーンは結果的に煤状物質に含まれていることが分かる。

また、分離装置 12 に供給される煤状物質含有気流の温度を 630 °C にすると（実施例 3 の場合）、分離装置 12 で回収されるフラレーンの量が減少し、分離装置 12 の後段のガス冷却装置 13 内に溜まるフラレーン量が増加する。従って、この場合は、図 2 に示すフラレーンの製造装置 29 を用いてフラレーンを回収することもできる。

## 【0078】

1. 前記した液体クロマトグラフィーの条件

装置：Agilent 社製 1100

溶離液：48 vol % TOL/MeOH 0.8 ml リットル/分

カラム：YMC-Pack ODS-AM, S-3  $\mu$ m, 12 nm

75 \* 4.6 mm I. D.

カラム温度：40 °C 波長：308 nm

注入量：5  $\mu$  リットル (サンプル中 C60 = 100 ~ 400 ppm)

(サンプル中 C70 = 50 ~ 300 ppm)

## 【0079】

2. 煤状物質中の中のフラレーンの分析の手順

(1) 10 ml リットルスクリュエ管に煤状物質を 0.015 g 精秤する (A)。

(2) 次に、トリメチルベンゼン (TMB) = 7 ml リットル (6 g) を添加して、溶媒添加量を精秤する (B)。

(3) 混合後、超音波で 15 分処理して室温まで冷却する。

(4) デスミックスフィルター (0.5  $\mu$ m-P T F E) をプラスチック注射器にセットする。

50

(18)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

(5) 注射器にLCサンプルを1mリットル程度加え、LCバイアル瓶へ濾過する。

(6) LC分析を実施する。

希釈率 =  $B/A$  (約400)

【0080】

1. 前記したガスクロマトグラフィーは以下の条件で行った。

装置: HP6850 Series (FID)

カラム: DB-1HT 15m\*0.25mm 0.1 $\mu$ m

(プレカラム: Deact Fused Silica 1m\*0.25mm)

オープン温度: 60℃→12℃/分→350℃(2分) トータル=26.17分

注入口温度: 350℃ 検出器温度: 360℃

カラム流量 1mリットル/分 (He=52.8kPa) カラム+メイクアップ

流量: 30mリットル/分

注入方法: スプリットレス (パージ時間2分) パージ流量: 50mリットル/分

水素流量: 35mリットル/分 Air流量: 350mリットル/分

洗浄: サンプル→洗浄3回、ポンプ5回 注入後洗浄5回

注入量: 1 $\mu$ リットル

取り込み速度: 20Hz

【0081】

2. 煤状物質中の多環状芳香族化合物の分析の手順 (煤状物質中の多環状芳香族化合物分析 (検出限界=20ppm))

※トルエン (TOL) 溶液中の煤状物質濃度が高いと、多環状芳香族化合物成分はトルエンに抽出されず、多環状芳香族化合物成分内に残存するので下記の希釈率とする。

(1) 25mリットル三角フラスコにサンプルを0.01g精秤する [A]。

(2) トルエンを5mリットル加えて、超音波で15分処理して抽出する。

(3) 予め、10mリットルガラス製注射器にデスミックスフィルター (0.5 $\mu$ m-PTFE) をセットして、TOL=5mリットルを2回に分けて、洗浄を実施する。

(フィルターからのBlank抑制)

(4) 100mリットルナスフラスコ (蓋込み) の空重量を精秤する [B]。

(5) 注射器にサンプル全量を投入し、>50mリットルナスフラスコへ濾過液を回収する (固形分除去)

(6) 注射器に再度TOL=5mリットルを投入し、ナスフラスコへ洗浄濾液を回収する。

(7) ナスフラスコをエバポレーターにセットして乾固させる。

(8) エバポレーター条件 (温度=50℃、減圧=250→60torr)

(9) TOL=1mリットルを多環状芳香族化合物専用注射器にて添加する。

(10) ナスフラスコ内の多環状芳香族化合物成分を溶解させる (手動)。

(11) サンプル+ナスフラスコ (蓋込み) を精秤する [C]。

(12) GCバイアル瓶へサンプルを移し、GC分析を実施する。

(13) 計算方法

多環状芳香族化合物s (ppm) = IS濃度 (ppm) / IS面積 \* 全多環状芳香族化合物s面積 \* ([C] - [B]) / [A]

※TOL溶媒ブランクを差し引く。

【0082】

【発明の効果】

以上説明した本発明によれば、フラーレンの製造、フラーレンと他の煤成分の分離を1つの装置内で連続的に行うことができ、且つ大量のフラーレンを連続的に生産することが可能となる。

次世代を担う新材料、新素材として多方面から注目されているフラーレンを工業的規模で製造した場合、同時に大量の生成される煤状物質からフラーレンを効率良く分離、回収することが出来る。

(19)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

更に、フラーレンの製造過程で発生する多環状芳香族化合物の分離を効率よく行い、より品質の高いフラーレンを提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の第 1 の実施の形態に係るフラーレンの製造装置の概略構成図である。

【図 2】 本発明の第 2 の実施の形態に係るフラーレンの製造装置の概略構成図である。

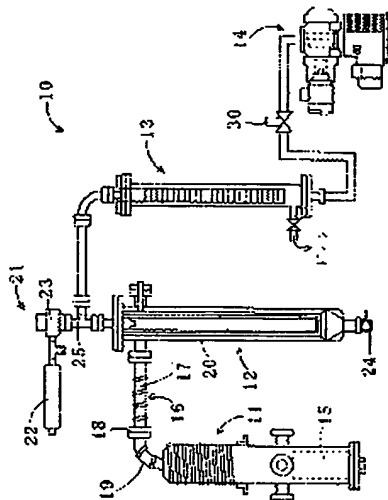
【図 3】 煤状物質を加熱した際の重量減少を示したグラフである。

【図 4】 同煤状物質を加熱した際に発生したガスの定性分析結果を示すグラフである。

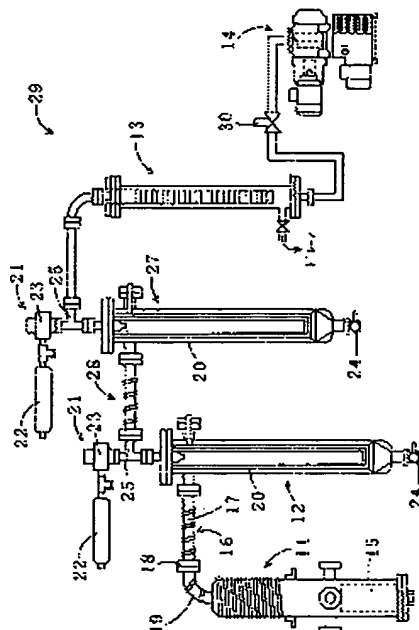
【符号の説明】

10：フラーレンの製造装置、11：フラーレン生成炉、12：分離装置、13：ガス冷却装置、14：減圧装置、15：バーナー、16：ガス降温手段、17：パイプ、18：フランジ、19：排気管、20：耐熱性フィルター、21：パルスジェット機構、22：タンク、23：電磁弁、24：排出弁、25：ガス出口、27：分離装置、28：ガス降温手段、29：フラーレンの製造装置、30：バルブ

【図 1】



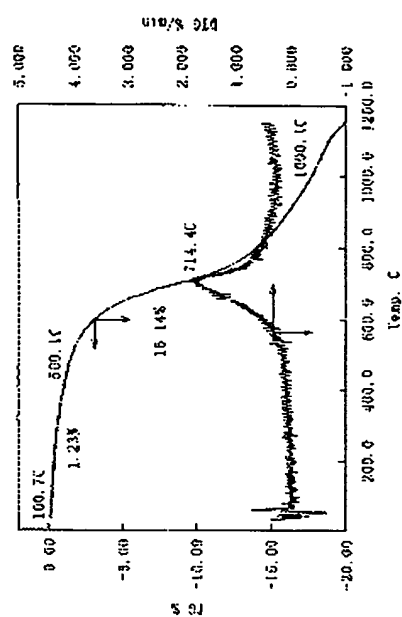
【図 2】



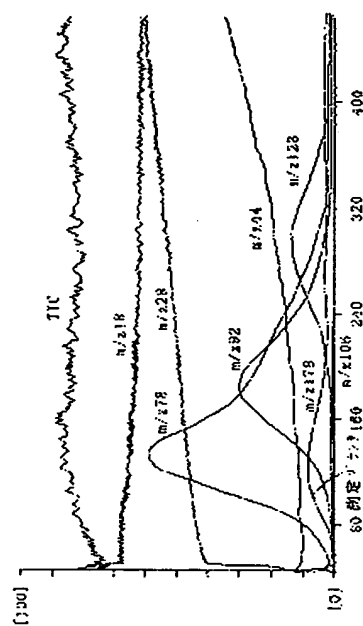
(20)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

【図 3】



【図 4】



(21)

JP 2004-269298 A 2004.9.30

---

フロントページの続き

Fターム(参考) 4D056 AB01 AC03 BA03 CA14 CA18 CA31 CA39

4D076 AA14 AA24 BE03 FA02 FA12 HA11 JA03

4G146 AA07 BA12 BC03 BC27 BC34B BC38B BC50 CA03 CA05 CA09

CA11 CA17 DA03 DA40 DA41 DA45



\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1]

The process which makes the soot-like matter content air current which contains fullerene, a multi-annular aromatic compound, and a carbon system macromolecule component by carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material, or pyrolyzing a hydrocarbon raw material generate,

The manufacture approach of the fullerene which lets said soot-like matter content air current of the elevated-temperature condition acquired at said process pass in a heat-resistant filter, carries out separation removal of the evaporation object which makes said multi-annular aromatic compound a subject, and is characterized by having the process which obtains the soot-like matter including said hula lane.

[Claim 2]

The manufacture approach of the fullerene characterized by separating said fullerene in the manufacture approach of fullerene according to claim 1 from said soot-like matter from which said multi-annular aromatic compound was removed.

[Claim 3]

The manufacture approach of the fullerene characterized by separating said fullerene from said soot-like matter from which said vaporized multi-annular aromatic compound was removed by extracting said fullerene with a solvent in the manufacture approach of fullerene according to claim 2.

[Claim 4]

The process which makes the soot-like matter content air current which contains fullerene, a multi-annular aromatic compound, and a carbon system macromolecule component by carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material, or pyrolyzing a hydrocarbon raw material generate,

The manufacture approach of the fullerene characterized by letting said soot-like matter content air current of the elevated-temperature condition acquired at said process pass in a heat-resistant filter, and having the process which separates the evaporation object which makes a subject said multi-annular aromatic compound and mixture of said fullerene in the state of an air current..

[Claim 5]

The manufacture approach of the fullerene which carries out temperature of said evaporation object of an air-current condition below at the temperature which said fullerene solidifies beyond the evaporation temperature of said multi-annular aromatic compound, and is characterized by collecting said solidified fullerene in the manufacture approach of fullerene according to claim 4.

[Claim 6]

It is the manufacture approach of the fullerene characterized by performing recovery of said fullerene using another heat-resistant filter in the manufacture approach of fullerene according to claim 5.

[Claim 7]

The manufacture approach of the fullerene characterized by lowering the temperature of the air current

which passed said heat-resistant filter in the manufacture approach of fullerene according to claim 4, making said multi-annular aromatic compound and said fullerene solidify and/or liquefy, and collecting.  
[Claim 8]

The manufacture approach of the fullerene characterized by obtaining the fullerene which raised the purity in which the solubility of fullerene carried out elution separation of the multi-annular aromatic compound, and remained with the organic solvent with the high solubility of a multi-annular aromatic compound low from said multi-annular aromatic compound and the mixture of fullerene in the manufacture approach of fullerene according to claim 7.

[Claim 9]

The manufacture approach of the fullerene which heats said multi-annular aromatic compound and the mixture of fullerene, carries out evaporation separation of said multi-annular aromatic compound, and is characterized by obtaining the fullerene which remained in the manufacture approach of fullerene according to claim 7.

[Claim 10]

It is the manufacture approach of the fullerene characterized by said hydrocarbon raw material consisting of aromatic hydrocarbon of carbon numbers 6-20 in the manufacture approach of fullerene given in any 1 term of claims 1-9.

[Claim 11]

It is the manufacture approach of the fullerene characterized by for said soot-like matter content air current turning into a revolution style in the manufacture approach of fullerene given in any 1 term of claims 1-10, and flowing the inside of piping.

[Claim 12]

Fullerene generation equipment which makes the air current containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component generate from a hydrocarbon raw material,

The manufacturing installation of the fullerene characterized by having the decollator equipped with the heat-resistant filter which separates said fullerene and a carbon system macromolecule component excluding said multi-annular aromatic compound of a gaseous state from the air current containing said soot-like matter.

[Claim 13]

Fullerene generation equipment which makes the air current containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component generate from a hydrocarbon raw material,

The manufacturing installation of the fullerene characterized by having the decollator equipped with the heat-resistant filter which is made to pass said multi-annular aromatic compound and said fullerene of a gaseous state, and separates said carbon system macromolecule component from the air current containing said soot-like matter.

[Claim 14]

The manufacturing installation of the fullerene characterized by establishing the gas temperature fall means which cools the air current generated from said fullerene generation equipment to predetermined temperature between said fullerene generation equipment and said decollator in the manufacturing installation of fullerene given in any 1 term of claims 12 and 13.

[Claim 15]

The manufacturing installation of the fullerene characterized by having the air-current revolution device in which said gas temperature fall means is revolved in the air current which passes through the inside of the path of the cross-section round shape which had the perimeter cooled, and this path in the manufacturing installation of fullerene according to claim 14.

[Claim 16]

The manufacturing installation of the fullerene characterized by forming the decompression device with which said fullerene generation equipment is decompressed and this fullerene generation equipment to said decollator attracts further the gas which conveys said soot-like matter in the manufacturing

installation of fullerene given in any 1 term of claims 12-15.

---

[Translation done.]

**THIS PAGE BLANK** (USPTO)

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]

This invention relates to the manufacturing installation and the manufacture approach of the fullerene which is a new carbon material, and the fullerene which has the molecular structure of C60, C70, C76, C78, C82, and C84 especially.

[0002]

[Description of the Prior Art]

Although the molecule-like carbon matter new type called the carbon cluster (spherical macromolecule) of the closed shell structured type of carbon numbers 60 and 70 and 84 grades was compounded in recent years, the carbon cluster which has this special molecular structure is also called fullerene, and is called fullerene C60, this C70, this C84, etc. by the carbon number which constitutes that molecule frame (only called C60, C70, and C84 grade).

These fullerene (only henceforth "fullerene") is new carbon materials, and since it is expected that unique physical properties will be shown from the special molecular structure, research on the property and application development is advanced briskly. As for fullerene, the application to fields, such as for example, diamond coating, a cell ingredient, a coating, a heat insulator, lubricant, drugs, and cosmetics, is expected.

[0003]

As the manufacture approach of fullerene, although the arc discharge method, the resistance heating method, the laser evaporation method, the combustion method, etc. are known, the combustion method to which the incomplete combustion of the annular aromatic hydrocarbon, such as benzene, is carried out is expected as an approach of manufacturing a lot of fullerene cheaply.

Moreover, as an approach of separating fullerene, the solvent extraction method is known from the soot-like matter containing fullerene. The carbon system giant-molecule component which occupies many of other soot-like matter to fullerene dissolving this in organic solvents, such as benzene, toluene, and a carbon disulfide, and which is the so-called "soot" is an approach using the property to be hard to dissolve in an organic solvent like graphite or amorphous carbon.

[0004]

Moreover, as an option which separates fullerene from the soot-like matter, the soot-like matter is heated under a high vacuum and the approach (the sublimating method) to which fullerene is made to sublimate is also learned. This sublimating method is the special separation approach which needs an elevated temperature 400 degrees C or more and the high vacuum conditions below 0.133Pa (10<sup>-3</sup>Torr), and since a solvent extraction method is easy to operate it compared with it, it is used widely.

Furthermore, the fullerene obtained by the extract is a solution which mainly contains C60 and C70, and in order to separate single fullerene from this solution, the approach of carrying out clathration of the fullerene else [, such as column chromatography separation and judgment recrystallization, ] etc. is applied.

[0005]

In addition, after carrying out contact processing of the solution which extracted the soot-like matter containing C60 with the organic solvent as the fullerene separation approach from the soot-like matter, and was obtained and which mainly contains C60 with activated carbon, there is a method of refining C60 by carrying out separation removal of the organic solvent from the obtained processing liquid (for example, patent reference 1 reference.).

Moreover, as a separation refiner of fullerene, the separation refiner of the batch type containing a heating container, a trap, and a decompression device is known. It specifically connects with the heating container and this heating container for making fullerene heat and sublimate, and has a decompression device for carrying out reduced pressure suction of the interior of the trap for depositing the sublimated fullerene, and a heating container and a trap at least, and the heating container, the trap, and the decompression device are arranged in this sequence (for example, patent reference 2 reference.).

[0006]

[Patent reference 1]

JP,5-85711,A

[Patent reference 2]

JP,9-227111,A

[0007]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]

However, each of these separation purification approaches is batch types, and is the purification techniques for the little soot-like matter. Therefore, it is unsuitable for fullerene manufacture on the industrial scale which makes a lot of soot-like matter applicable to purification.

Moreover, current [ which is represented by carbon black ], the carbon system macromolecule component which is worthy soot industrially are contained in this soot-like matter in large quantities. Therefore, from a lot of soot-like matter, also in order to also use these carbon system macromolecule component effectively, development of the manufacturing installation of fullerene which can separate a carbon system macromolecule component and fullerene as efficiently as possible, and the manufacture approach was desired.

[0008]

Moreover, also in the manufacture approach of fullerene, the multi-annular aromatic compound generated with fullerene had become a problem. When manufacturing fullerene by the approach (combustion method) of carrying out the incomplete combustion of the organic substance, such as toluene, under the temperature and the flow and pressure requirement specifically controlled, it is known that the soot-like matter containing two or more fullerene which is mainly concerned with C60 and C70 will generate.

[0009]

Also in an aromatic compound, in presentation, as for this multi-annular aromatic compound, the appearance represented by the benzopyrene has few rates of a hydrogen atom, and it is similar to it with fullerene. Therefore, when intermingled in fullerene, the reactivity of fullerene may be checked, or the property of the proper of fullerene may be affected. Moreover, a these multi-annular aromatic compound is poison, and it is necessary to reduce it as much as possible from the field of safety generally.

[0010]

However, when the solubility to the solvent of fullerene and a multi-annular aromatic compound is measured, generally the solubility of a multi-annular aromatic compound is higher 10 or more times. If a solvent extracts the soot-like matter for the reason, it will be difficult to extract fullerene alternatively and it will extract most multi-annular aromatic compounds in the soot-like matter to coincidence to an extract. Even if for that reason it condenses and dries an extract, or it carries out solid content which condensed the extract and deposited a \*\* exception, dries and it obtains a solid-state (fullerene is mainly included) in order to obtain fullerene from this extract as a solid-state, the problem that about 0.01 - 10% of multi-annular aromatic compound will usually be contained is in this solid-state.

This invention was made in view of this situation, and aims at offering the manufacture approach of the

fullerene which carries out separation recovery of the fullerene efficiently from a lot of soot-like matter to generate, and its manufacturing installation in the case of extensive manufacture of fullerene.

[0011]

[Means for Solving the Problem]

The manufacture approach of the fullerene concerning the 1st invention in alignment with said purpose By carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material, or pyrolyzing a hydrocarbon raw material The process which makes fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter content air current containing a carbon system macromolecule component generate, It lets said soot-like matter content air current of the elevated-temperature condition acquired at said process pass in a heat-resistant filter, separation removal of the evaporation object which makes said multi-annular aromatic compound a subject is carried out, and it has the process which obtains the soot-like matter including said hula lane. A multi-annular aromatic compound is easily removable from a soot-like matter content air current with this.

[0012]

Moreover, the manufacture approach of the fullerene concerning the 2nd invention has separated said fullerene from said soot-like matter from which said multi-annular aromatic compound was removed in the manufacture approach of the fullerene concerning the 1st invention.

The manufacture approach of the fullerene concerning the 3rd invention has separated said fullerene from said soot-like matter from which said vaporized multi-annular aromatic compound was removed by extracting said fullerene with a solvent in the manufacture approach of the fullerene concerning the 2nd invention.

[0013]

The manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention by carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material, or pyrolyzing a hydrocarbon raw material The process which makes fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter content air current containing a carbon system macromolecule component generate, It lets said soot-like matter content air current of the elevated-temperature condition acquired at said process pass in a heat-resistant filter, and has the process which separates the evaporation object which makes a subject said multi-annular aromatic compound and mixture of said fullerene in the state of an air current.

[0014]

Said fullerene which the manufacture approach of the fullerene concerning the 5th invention is below the temperature that said fullerene solidifies, carried out temperature of said evaporation object of an air-current condition in the manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention beyond the evaporation temperature of said multi-annular aromatic compound, and was solidified is collected.

The manufacture approach of the fullerene concerning the 6th invention is performing recovery of said fullerene in the manufacture approach of the fullerene concerning the 5th invention using another heat-resistant filter.

In the manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention, the manufacture approach of the fullerene concerning the 7th invention lowers the temperature of the air current which passed said heat-resistant filter, and it is made to solidify and/or liquefy and it is collecting said multi-annular aromatic compounds and said fullerene.

[0015]

The manufacture approach of the fullerene concerning the 8th invention has obtained the fullerene which raised the purity in which the solubility of fullerene carried out elution separation of the multi-annular aromatic compound, and remained with the organic solvent with the high solubility of a multi-annular aromatic compound low from said multi-annular aromatic compound and the mixture of fullerene in the manufacture approach of the fullerene concerning the 7th invention.

The manufacture approach of the fullerene concerning the 9th invention heats said multi-annular aromatic compound and the mixture of fullerene in the manufacture approach of the fullerene concerning the 7th invention, and carries out evaporation separation of said multi-annular aromatic compound, and the fullerene which remained is obtained.

[0016]

Said hydrocarbon raw material consists of aromatic hydrocarbon of carbon numbers 6-20 in the manufacture approach of the fullerene which the manufacture approach of the fullerene concerning the 10th invention requires for the 1st - the 9th invention.

In the manufacture approach of the fullerene which the manufacture approach of the fullerene concerning the 11th invention requires for the 1st - the 10th invention, said soot-like matter content air current turns into a revolution style, and flows the inside of piping (path).

[0017]

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 12th invention It is the manufacturing installation of the fullerene which applies the manufacture approach of the fullerene concerning the 1st invention. The fullerene generation equipment which makes the air current containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component generate from a hydrocarbon raw material, It has the decollator equipped with the heat-resistant filter which separates said fullerene and a carbon system macromolecule component excluding said multi-annular aromatic compound of a gaseous state from the air current containing said soot-like matter.

[0018]

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 13th invention It is the manufacturing installation of the fullerene which applies the manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention. The fullerene generation equipment which makes the air current containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component generate from a hydrocarbon raw material, It has the decollator equipped with the heat-resistant filter which is made to pass said multi-annular aromatic compound and said fullerene of a gaseous state, and separates said carbon system macromolecule component from the air current containing said soot-like matter.

[0019]

In the manufacturing installation of the fullerene which the manufacturing installation of the fullerene concerning the 14th invention requires for the 12th and 13th invention, the gas temperature fall means which cools the air current generated from said fullerene generation equipment to predetermined temperature is established between said fullerene generation equipment and said decollator.

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 15th invention equips said gas temperature fall means with the path of the cross-section round shape which had the perimeter cooled, and the air-current revolution device in which it is made to circle in the air current which passes through the inside of this path, in the manufacturing installation of the fullerene concerning the 14th invention.

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 16th invention decompresses said fullerene generation equipment in the manufacturing installation of the fullerene concerning the 12th - the 15th invention, and the decompression device with which this fullerene generation equipment to said decollator attracts further the gas which conveys said soot-like matter is formed.

[0020]

[Embodiment of the Invention]

Then, referring to the attached drawing, it explains per gestalt of the operation which materialized this invention, and an understanding of this invention is presented.

The graph and drawing 4 which showed the weight reduction at the time of the outline block diagram of the manufacturing installation of the fullerene which drawing 1 requires for the gestalt of operation of the 1st of this invention here, the outline block diagram of the manufacturing installation of the fullerene which drawing 2 requires for the gestalt of operation of the 2nd of this invention, and drawing 3 heating the soot-like matter are a graph which shows the qualitative-analysis result of the gas which occurred when the said soot-like matter was heated.

[0021]

As shown in drawing 1 , the manufacturing installation 10 of the fullerene concerning the gestalt of operation of the 1st of this invention The fullerene generation furnace 11 which is an example of

fullerene generation equipment, and the component of the soot-like matter to fullerene and others and the decollator 12 which specifically separates a multi-annular aromatic compound and a carbon system macromolecule component according to conditions, It has the gas cooling equipment 13 which cools the gas which went via the decollator 12, and the decompression device 14 which consists of a vacuum pump which attracts the gas lowered by gas cooling equipment 13. Hereafter, these are explained in detail.

[0022]

With the gestalt of this operation, since generation of fullerene uses the combustion method, the fullerene generation furnace 11 makes the internal pressure reduced pressure conditions and the desirable condition (20 or more-Torr for example, 100 or less Torr) near a vacuum to atmospheric pressure. Fullerene hydrocarbon raw materials (only henceforth a hydrocarbon raw material) introduced from introductory tubing which was formed in the side face or base of this fullerene generation furnace 11, and which is not illustrated, such as toluene and benzene, were gasified, and oxygen was mixed, and it considered as mixed gas, and has introduced in the fullerene generation furnace 11.

[0023]

And in the fullerene generation furnace 11, it has the burner 15 for carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material. The mixed gas of a carbonaceous raw material and oxygen is supplied to a burner 15. The air current (soot-like matter content air current) which contains the soot-like matter containing fullerene continuously according to such structure can be manufactured. With the gestalt of this operation, from the hot soot-like matter content air current generated from this fullerene generation furnace 11, fullerene is separated and manufacture of a lot of [ continuous and ] fullerene is performed.

[0024]

The decollator 12 is installed in the lower stream of a river of the fullerene generation furnace 11 through the gas temperature fall means 16. This gas temperature fall means 16 with the gestalt of this operation It has the pipe (piping, path) 17 cooled by predetermined temperature in the perimeter, and the inlet (not shown) which blows an air current from a slanting tangential direction into this pipe 17. When the soot-like matter content air current of a turbulent flow condition passes through the inside of this pipe 17 at an elevated temperature Cooling is carried out from a perimeter, the temperature is lowered to predetermined temperature (for example, beyond the liquefaction temperature of a multi-annular aromatic compound beyond [ below the solidification temperature of fullerene or beyond the solidification temperature of fullerene ] below the heat-resistant temperature of a decollator 12), and it is sent in the decollator 12.

[0025]

In addition, the inlet which generates a revolution style in a pipe 17 may be established in the flange 18 of an entrance side, may connect a branch pipe to the exhaust pipe 19 connected to the fullerene generation furnace 11 further at plurality, and may connect this branch pipe to a slanting tangential direction in the location of the upstream of a pipe 17. Thus, since the air current passed by constituting touches the medial surface in a pipe 17 positively, it is cooled efficiently. Moreover, since an air current is positively passed near the wall by evaporation having a difficult carbon system giant-molecule component (carbon black being included) so much in an air current, and the rate of flow of the wall part in a pipe 17 becoming slow, and establishing an air-current revolution device as mentioned above by the flow of the usual straight air current although it is in the inclination for the inside of a pipe 17 to be blockaded gradually, deposition of a solid is reducible.

[0026]

Moreover, the temperature of a soot-like matter content air current can also be lowered by changing into a turbulent flow condition the soot-like matter content air current which passes a pipe 17 as a gas temperature fall means 16, and making it pass. In this case, since it is easy to generate lock out of \*\*\*\*\* in a pipe 17, it is desirable to gather the rate of the gas passed as much as possible.

[0027]

A decollator 12 is for separating a part for the solid content in the soot-like matter content air current



generated from the fullerene generation furnace 11, and an air current, and equips the interior with the heat-resistant filter 20.

**\* NOTICES \***

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**TECHNICAL FIELD**

---

**[Field of the Invention]**

This invention relates to the manufacturing installation and the manufacture approach of the fullerene which is a new carbon material, and the fullerene which has the molecular structure of C60, C70, C76, C78, C82, and C84 especially.

[0002]

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## PRIOR ART

## [Description of the Prior Art]

Although the molecule-like carbon matter new type called the carbon cluster (spherical macromolecule) of the closed shell structured type of carbon numbers 60 and 70 and 84 grades was compounded in recent years, the carbon cluster which has this special molecular structure is also called fullerene, and is called fullerene C60, this C70, this C84, etc. by the carbon number which constitutes that molecule frame (only called C60, C70, and C84 grade).

These fullerene (only henceforth "fullerene") is new carbon materials, and since it is expected that unique physical properties will be shown from the special molecular structure, research on the property and application development is advanced briskly. As for fullerene, the application to fields, such as for example, diamond coating, a cell ingredient, a coating, a heat insulator, lubricant, drugs, and cosmetics, is expected.

## [0003]

As the manufacture approach of fullerene, although the arc discharge method, the resistance heating method, the laser evaporation method, the combustion method, etc. are known, the combustion method to which the incomplete combustion of the annular aromatic hydrocarbon, such as benzene, is carried out is expected as an approach of manufacturing a lot of fullerene cheaply.

Moreover, as an approach of separating fullerene, the solvent extraction method is known from the soot-like matter containing fullerene. The carbon system giant-molecule component which occupies many of other soot-like matter to fullerene dissolving this in organic solvents, such as benzene, toluene, and a carbon disulfide, and which is the so-called "soot" is an approach using the property to be hard to dissolve in an organic solvent like graphite or amorphous carbon.

## [0004]

Moreover, as an option which separates fullerene from the soot-like matter, the soot-like matter is heated under a high vacuum and the approach (the sublimating method) to which fullerene is made to sublimate is also learned. This sublimating method is the special separation approach which needs an elevated temperature 400 degrees C or more and the high vacuum conditions below 0.133Pa (10<sup>-3</sup>Torr), and since a solvent extraction method is easy to operate it compared with it, it is used widely.

Furthermore, the fullerene obtained by the extract is a solution which mainly contains C60 and C70, and in order to separate single fullerene from this solution, the approach of carrying out clathration of the fullerene else [, such as column chromatography separation and judgment recrystallization, ] etc. is applied.

## [0005]

In addition, after carrying out contact processing of the solution which extracted the soot-like matter containing C60 with the organic solvent as the fullerene separation approach from the soot-like matter, and was obtained and which mainly contains C60 with activated carbon, there is a method of refining C60 by carrying out separation removal of the organic solvent from the obtained processing liquid (for example, patent reference 1 reference.).

Moreover, as a separation refiner of fullerene, the separation refiner of the batch type containing a

heating container, a trap, and a decompression device is known. It specifically connects with the heating container and this heating container for making fullerene heat and sublimate, and has a decompression device for carrying out reduced pressure suction of the interior of the trap for depositing the sublimated fullerene, and a heating container and a trap at least, and the heating container, the trap, and the decompression device are arranged in this sequence (for example, patent reference 2 reference.).

[0006]

[Patent reference 1]

JP,5-85711,A

[Patent reference 2]

JP,9-227111,A

[0007]

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**EFFECT OF THE INVENTION**

---

**[Effect of the Invention]**

According to this invention explained above, it becomes possible to be able to separate manufacture of fullerene, and fullerene and other soot components continuously within one equipment, and to produce a lot of fullerene continuously.

When the fullerene which attracts attention since various as the exotic material which bears the next generation, and new materials is manufactured on a scale of industrial, fullerene can be efficiently separated and collected from a lot of soot-like matter generated to coincidence.

Furthermore, the multi-annular aromatic compound generated in the manufacture process of fullerene is separated efficiently, and fullerene with more high quality can be offered.

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

**TECHNICAL PROBLEM**


---

[Problem(s) to be Solved by the Invention]

However, each of these separation purification approaches is batch types, and is the purification techniques for the little soot-like matter. Therefore, it is unsuitable for fullerene manufacture on the industrial scale which makes a lot of soot-like matter applicable to purification.

Moreover, current [ which is represented by carbon black ], the carbon system macromolecule component which is worthy soot industrially are contained in this soot-like matter in large quantities. Therefore, from a lot of soot-like matter, also in order to also use these carbon system macromolecule component effectively, development of the manufacturing installation of fullerene which can separate a carbon system macromolecule component and fullerene as efficiently as possible, and the manufacture approach was desired.

[0008]

Moreover, also in the manufacture approach of fullerene, the multi-annular aromatic compound generated with fullerene had become a problem. When manufacturing fullerene by the approach (combustion method) of carrying out the incomplete combustion of the organic substance, such as toluene, under the temperature and the flow and pressure requirement specifically controlled, it is known that the soot-like matter containing two or more fullerene which is mainly concerned with C60 and C70 will generate.

[0009]

Also in an aromatic compound, in presentation, as for this multi-annular aromatic compound, the appearance represented by the benzopyrene has few rates of a hydrogen atom, and it is similar to it with fullerene. Therefore, when intermingled in fullerene, the reactivity of fullerene may be checked, or the property of the proper of fullerene may be affected. Moreover, a these multi-annular aromatic compound is poison, and it is necessary to reduce it as much as possible from the field of safety generally.

[0010]

However, when the solubility to the solvent of fullerene and a multi-annular aromatic compound is measured, generally the solubility of a multi-annular aromatic compound is higher 10 or more times. If a solvent extracts the soot-like matter for the reason, it will be difficult to extract fullerene alternatively and it will extract most multi-annular aromatic compounds in the soot-like matter to coincidence to an extract. Even if for that reason it condenses and dries an extract, or it carries out solid content which condensed the extract and deposited a \*\* exception, dries and it obtains a solid-state (fullerene is mainly included) in order to obtain fullerene from this extract as a solid-state, the problem that about 0.01 - 10% of multi-annular aromatic compound will usually be contained is in this solid-state.

This invention was made in view of this situation, and aims at offering the manufacture approach of the fullerene which carries out separation recovery of the fullerene efficiently from a lot of soot-like matter to generate, and its manufacturing installation in the case of extensive manufacture of fullerene.

[0011]

---

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

MEANS

---

## [Means for Solving the Problem]

The manufacture approach of the fullerene concerning the 1st invention in alignment with said purpose By carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material, or pyrolyzing a hydrocarbon raw material The process which makes fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter content air current containing a carbon system macromolecule component generate, It lets said soot-like matter content air current of the elevated-temperature condition acquired at said process pass in a heat-resistant filter, separation removal of the evaporation object which makes said multi-annular aromatic compound a subject is carried out, and it has the process which obtains the soot-like matter including said hula lane. A multi-annular aromatic compound is easily removable from a soot-like matter content air current with this.

## [0012]

Moreover, the manufacture approach of the fullerene concerning the 2nd invention has separated said fullerene from said soot-like matter from which said multi-annular aromatic compound was removed in the manufacture approach of the fullerene concerning the 1st invention.

The manufacture approach of the fullerene concerning the 3rd invention has separated said fullerene from said soot-like matter from which said vaporized multi-annular aromatic compound was removed by extracting said fullerene with a solvent in the manufacture approach of the fullerene concerning the 2nd invention.

## [0013]

The manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention by carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material, or pyrolyzing a hydrocarbon raw material The process which makes fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter content air current containing a carbon system macromolecule component generate, It lets said soot-like matter content air current of the elevated-temperature condition acquired at said process pass in a heat-resistant filter, and has the process which separates the evaporation object which makes a subject said multi-annular aromatic compound and mixture of said fullerene in the state of an air current.

## [0014]

Said fullerene which the manufacture approach of the fullerene concerning the 5th invention is below the temperature that said fullerene solidifies, carried out temperature of said evaporation object of an air-current condition in the manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention beyond the evaporation temperature of said multi-annular aromatic compound, and was solidified is collected.

The manufacture approach of the fullerene concerning the 6th invention is performing recovery of said fullerene in the manufacture approach of the fullerene concerning the 5th invention using another heat-resistant filter.

In the manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention, the manufacture approach of the fullerene concerning the 7th invention lowers the temperature of the air current which passed said heat-resistant filter, and it is made to solidify and/or liquefy and it is collecting said multi-annular aromatic compounds and said fullerene.



[0015]

The manufacture approach of the fullerene concerning the 8th invention has obtained the fullerene which raised the purity in which the solubility of fullerene carried out elution separation of the multi-annular aromatic compound, and remained with the organic solvent with the high solubility of a multi-annular aromatic compound low from said multi-annular aromatic compound and the mixture of fullerene in the manufacture approach of the fullerene concerning the 7th invention.

The manufacture approach of the fullerene concerning the 9th invention heats said multi-annular aromatic compound and the mixture of fullerene in the manufacture approach of the fullerene concerning the 7th invention, and carries out evaporation separation of said multi-annular aromatic compound, and the fullerene which remained is obtained.

[0016]

Said hydrocarbon raw material consists of aromatic hydrocarbon of carbon numbers 6-20 in the manufacture approach of the fullerene which the manufacture approach of the fullerene concerning the 10th invention requires for the 1st - the 9th invention.

In the manufacture approach of the fullerene which the manufacture approach of the fullerene concerning the 11th invention requires for the 1st - the 10th invention, said soot-like matter content air current turns into a revolution style, and flows the inside of piping (path).

[0017]

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 12th invention It is the manufacturing installation of the fullerene which applies the manufacture approach of the fullerene concerning the 1st invention. The fullerene generation equipment which makes the air current containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component generate from a hydrocarbon raw material, It has the decollator equipped with the heat-resistant filter which separates said fullerene and a carbon system macromolecule component excluding said multi-annular aromatic compound of a gaseous state from the air current containing said soot-like matter.

[0018]

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 13th invention It is the manufacturing installation of the fullerene which applies the manufacture approach of the fullerene concerning the 4th invention. The fullerene generation equipment which makes the air current containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component generate from a hydrocarbon raw material, It has the decollator equipped with the heat-resistant filter which is made to pass said multi-annular aromatic compound and said fullerene of a gaseous state, and separates said carbon system macromolecule component from the air current containing said soot-like matter.

[0019]

In the manufacturing installation of the fullerene which the manufacturing installation of the fullerene concerning the 14th invention requires for the 12th and 13th invention, the gas temperature fall means which cools the air current generated from said fullerene generation equipment to predetermined temperature is established between said fullerene generation equipment and said decollator.

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 15th invention equips said gas temperature fall means with the path of the cross-section round shape which had the perimeter cooled, and the air-current revolution device in which it is made to circle in the air current which passes through the inside of this path, in the manufacturing installation of the fullerene concerning the 14th invention.

The manufacturing installation of the fullerene concerning the 16th invention decompresses said fullerene generation equipment in the manufacturing installation of the fullerene concerning the 12th - the 15th invention, and the decompression device with which this fullerene generation equipment to said decollator attracts further the gas which conveys said soot-like matter is formed.

[0020]

[Embodiment of the Invention]

Then, referring to the attached drawing, it explains per gestalt of the operation which materialized this

invention, and an understanding of this invention is presented.

The graph and drawing 4 which showed the weight reduction at the time of the outline block diagram of the manufacturing installation of the fullerene which drawing 1 requires for the gestalt of operation of the 1st of this invention here, the outline block diagram of the manufacturing installation of the fullerene which drawing 2 requires for the gestalt of operation of the 2nd of this invention, and drawing 3 heating the soot-like matter are a graph which shows the qualitative-analysis result of the gas which occurred when the said soot-like matter was heated.

[0021]

As shown in drawing 1, the manufacturing installation 10 of the fullerene concerning the gestalt of operation of the 1st of this invention The fullerene generation furnace 11 which is an example of fullerene generation equipment, and the component of the soot-like matter to fullerene and others and the decollator 12 which specifically separates a multi-annular aromatic compound and a carbon system macromolecule component according to conditions, It has the gas cooling equipment 13 which cools the gas which went via the decollator 12, and the decompression device 14 which consists of a vacuum pump which attracts the gas lowered by gas cooling equipment 13. Hereafter, these are explained in detail.

[0022]

With the gestalt of this operation, since generation of fullerene uses the combustion method, the fullerene generation furnace 11 makes the internal pressure reduced pressure conditions and the desirable condition (20 or more-Torr for example, 100 or less Torr) near a vacuum to atmospheric pressure. Fullerene hydrocarbon raw materials (only henceforth a hydrocarbon raw material) introduced from introductory tubing which was formed in the side face or base of this fullerene generation furnace 11, and which is not illustrated, such as toluene and benzene, were gasified, and oxygen was mixed, and it considered as mixed gas, and has introduced in the fullerene generation furnace 11.

[0023]

And in the fullerene generation furnace 11, it has the burner 15 for carrying out the incomplete combustion of the hydrocarbon raw material. The mixed gas of a carbonaceous raw material and oxygen is supplied to a burner 15. The air current (soot-like matter content air current) which contains the soot-like matter containing fullerene continuously according to such structure can be manufactured. With the gestalt of this operation, from the hot soot-like matter content air current generated from this fullerene generation furnace 11, fullerene is separated and manufacture of a lot of [ continuous and ] fullerene is performed.

[0024]

The decollator 12 is installed in the lower stream of a river of the fullerene generation furnace 11 through the gas temperature fall means 16. This gas temperature fall means 16 with the gestalt of this operation It has the pipe (piping, path) 17 cooled by predetermined temperature in the perimeter, and the inlet (not shown) which blows an air current from a slanting tangential direction into this pipe 17. When the soot-like matter content air current of a turbulent flow condition passes through the inside of this pipe 17 at an elevated temperature Cooling is carried out from a perimeter, the temperature is lowered to predetermined temperature (for example, beyond the liquefaction temperature of a multi-annular aromatic compound beyond [ below the solidification temperature of fullerene or beyond the solidification temperature of fullerene ] below the heat-resistant temperature of a decollator 12), and it is sent in the decollator 12.

[0025]

In addition, the inlet which generates a revolution style in a pipe 17 may be established in the flange 18 of an entrance side, may connect a branch pipe to the exhaust pipe 19 connected to the fullerene generation furnace 11 further at plurality, and may connect this branch pipe to a slanting tangential direction in the location of the upstream of a pipe 17. Thus, since the air current passed by constituting touches the medial surface in a pipe 17 positively, it is cooled efficiently. Moreover, since an air current is positively passed near the wall by evaporation having a difficult carbon system giant-molecule component (carbon black being included) so much in an air current, and the rate of flow of the wall part

in a pipe 17 becoming slow, and establishing an air-current revolution device as mentioned above by the flow of the usual straight air current although it is in the inclination for the inside of a pipe 17 to be blockaded gradually, deposition of a solid is reducible.

[0026]

Moreover, the temperature of a soot-like matter content air current can also be lowered by changing into a turbulent flow condition the soot-like matter content air current which passes a pipe 17 as a gas temperature fall means 16, and making it pass. In this case, since it is easy to generate lock out of \*\*\*\*\* in a pipe 17, it is desirable to gather the rate of the gas passed as much as possible.

[0027]

A decollator 12 is for separating a part for the solid content in the soot-like matter content air current generated from the fullerene generation furnace 11, and an air current, and equips the interior with the heat-resistant filter 20. Although the more high thing of the heat-resistant temperature of the heat-resistant filter 20 is desirable, in practice In passing the vaporized multi-annular aromatic compound and collecting fullerene and carbon system macromolecule components (\*\*\*\*\*). The temperature of gas is embraced and it is 300-500 degrees C (preferably). The heat-resistant temperature of 400-500 degrees C is enough, and to pass the vaporized fullerene and the vaporized multi-annular aromatic compound and collect carbon system macromolecule components, it is necessary to use the filter of the heat-resistant temperature of 600 - 750 degrees.

[0028]

The structure of a decollator 12 turns into bag filter structure used for the usual dust collector etc., and is constituted by the heat-resistant filter 20 which this bag filter described above. As such a heat-resistant filter 20, for example, the sintered metallic filter by the Japanese pole company, the sintered metallic filter by the Fuji filter company, etc. are mentioned. The magnitude of a filter opening is suitably chosen according to the combustion conditions which make fullerene generate, or the description of the soot-like matter.

[0029]

The aeropulse device 21 in which the solidification object (for example, a carbon system giant-molecule component, fullerene, or a carbon system giant-molecule component) which adhered periodically is removed is formed in the upper part at the decollator 12. By having the tank 22 which stores high-pressure inert gas (for example, nitrogen and an argon) etc., and a solenoid valve 23, and opening a solenoid valve 23 in short-time pulse periodically, this aeropulse device 21 puts in gas in the heat-resistant filter 20, drops the solidification object adhering to a perimeter caudad, opens an exhaust valve 24, and can discharge it now outside.

And the gas outlet 25 which discharges outside the gas which passed the heat-resistant filter 20 is established in the upper part of a decollator 12.

[0030]

Drawing 2 put the same decollator 27 as such a decollator 12 on two steps of serials, and arranges another gas temperature fall means 28 on the way. In addition, in the manufacturing installation 29 of the fullerene concerning the gestalt of operation of the 2nd of this invention shown in drawing 2, the same component as the manufacturing installation 10 of the above mentioned fullerene attaches the same number, and omits the detailed explanation.

If the temperature (for example, 600 degrees C) of the gas which came out of the decollator 12 to this decollator 27 is lowered further (for example, 400 degrees) and is supplied with the gas temperature fall means 28, it will solidify with the gas temperature fall means 28, and the gas-like fullerene which passed the decollator 12 will be recovered by the decollator 27. On the other hand, the still lower multi-annular aromatic compound of coagulation temperature will also pass a decollator 27 further.

[0031]

Gas cooling equipment 13 is formed in the gas outlet 25 (in the manufacturing installation 10 of the fullerene concerning the gestalt of the 1st operation, it becomes the gas outlet 25 of a decollator 12) of a decollator 27. The same as that of the usual heat exchanger or the multi-annular aromatic compound which serves as approximated structure and is contained in an air current liquefies, and this gas cooling

equipment 13 is discharged from a lower drain.

In addition, in a certain case, the gas temperature which flows into gas cooling equipment 13 contains 500 degrees C or more of fullerene evaporated in gas. In this case, if gas cooling equipment 13 cools gas at about 200-100 degrees C, the liquefaction object of the solidification object of fullerene and a multi-annular aromatic compound will be obtained.

[0032]

The decompression device 14 which follows this gas cooling equipment 13 consists of the usual vacuum pump. In addition, since the sublimation temperature of fullerene changes also with degree of vacuums, it controls a decompression device 14 to become the pressure which can collect fullerene from the amount of the hydrocarbon raw material to supply, oxygen, and inert gas most efficiently.

In addition, in front of gas cooling equipment 13, further, the special equipment which collects the fullerene generated by lowering temperature and multi-annular aromatic compounds is formed, and gas cooling equipment 13 may be used only in order to cool the gas which passes to a decompression device 14 below to predetermined temperature.

[0033]

Then, the manufacture approach of the fullerene concerning the gestalt of 1 operation of this invention is described.

Process (1)

In the process (1) of this invention, the soot-like matter content air current containing fullerene is acquired. Under the present circumstances, although fullerene is performed with the combustion method to which the incomplete combustion of the hydrocarbon (hydrocarbon raw material) used as a raw material is carried out using the fullerene generation furnace 11, it can also manufacture with the thermal decomposition method which makes a hydrocarbon raw material disassemble into the bottom of high temperature depending on the case.

In the case of fullerene manufacture, since a multi-annular aromatic compound (PAH) and a carbon system giant-molecule component (soot-like component containing carbon black) are also produced in coincidence, this soot-like matter content air current turns into an air current (soot-like matter content air current) containing fullerene, a multi-annular aromatic compound, and the soot-like matter containing a carbon system giant-molecule component.

[0034]

Since the temperature field where the maximum temperature in a fullerene composition region is low temperature comparatively compared with about 2000 degrees C and other approaches, and fullerene exists in the state of a gaseous phase, and carbon system macromolecule components other than fullerene which occupy many of soot-like matter especially exist in the state of a solid-state tends to specify a combustion method toward mass production method of fullerene and it can separate fullerene efficiently, it is desirable.

What is necessary is it to be common to carry out under reduced pressure to atmospheric pressure as a flow and pressure requirement, and just to choose whenever [ reduced pressure ] suitably, when manufacturing fullerene with a combustion method. As a concrete flow and pressure requirement, the displacement of a decompression device 14 is adjusted so that it may be set to 20 - 100Torr (still more preferably 30 - 50Torr), for example.

Although what is necessary is just to choose suitably as temperature conditions in the fullerene generation furnace 11 according to the flow and pressure requirement which carried out point \*\*, 1600-2000 degrees C is desirable especially, and it is especially desirable that it is 1700-1900 degrees C.

[0035]

As a hydrocarbon used as the raw material of fullerene, the aromatic hydrocarbon of the carbon numbers 6-20, such as benzene, toluene, a xylene, naphthalene, a methylnaphthalene, an anthracene, and a phenanthrene, is used suitably. Moreover, as a hydrocarbon raw material, it may use together to these aromatic hydrocarbon, and aliphatic hydrocarbon, such as a hexane, a heptane, and an octane, may be used.

[0036]

The hydrocarbon raw material used in a combustion method acts on coincidence also as a heat source. That is, this hydrocarbon raw material generates the carbon unit for forming a fullerene frame by carrying out the dehydrogenation of the hydrocarbon raw material while raising the temperature which reacts with oxygen, generates heat and becomes generable [ fullerene ]. Carbon units gather on a fixed pressure and temperature conditions, and form fullerene.

[0037]

As amount of the oxygen used used in a combustion method, although it changes a little also with classes of hydrocarbon raw material, it is desirable that the amount of the carbon in a hydrocarbon raw material, the mole ratio of the oxygen to be used, and a C/O ratio are 0.7-1.3, and it is still more desirable that it is 1.0-1.2.

Inert gas may be made to exist in the system of reaction in a combustion method to fullerene in addition to oxygen. In the gestalt of this operation, inert gas means fullerene and the gas which does not react substantially. As a class of inert gas, helium, neon, an argon, nitrogen, and such mixture are mentioned.

[0038]

In the soot-like matter content air current acquired by the combustion method, fullerene and a multi-annular aromatic compound are contained. The remainders other than these are hydrocarbons, carbon black, etc. of a giant molecule which usually have some hydrogen atom by making carbon graphite structure with graphite structure into a frame (carbon system giant-molecule component).

It is desirable that fullerene is contained in the soot-like matter content air current acquired at a process (1) 5% of the weight or more, and being contained especially 15% or more is desirable 10 more% or more.

Moreover, although there will be no limit in a carbon number if the fullerene manufactured according to the gestalt of this operation has fullerene structure, it is usually the fullerene of carbon numbers 60-84, and it is desirable that the percentage of C60 and C70 is 50% or more in [ all ] fullerene especially, and it is desirable that it is especially 80% or more 70 more% or more.

[0039]

The soot-like matter content air current acquired at a process (1) has a loose rate, and usually has the temperature of 300 degrees C or more. This air current may be offered to the following process (2) as it is, the inert gas style of point \*\* is supplied, for example, an air speed may be raised, and the effectiveness in a process (2) may be raised, and this soot-like matter content air current may be heated if needed.

## \* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

## EXAMPLE

[Example]

Although an example is shown below and this invention is explained to it still more concretely, unless the summary of this invention is exceeded, this invention is not limited to the following examples.

[0068]

(Example 1)

3.8mg of soot-like matter obtained by the combustion method by using toluene as a raw material was heated from the room temperature to 1150 degrees C in 20-degree-C per minute by 100 cc/of desiccation nitrogen gas in inside using the apparatus for thermogravimetry ( TG-DTA6300 by SEIKO CORP.), and change of weight was measured.

The obtained result is shown in drawing 3 .

In drawing 3 , in a left axis of ordinate, a right axis of ordinate shows the rate of change of the rate of a raw material, and an axis of abscissa shows heating temperature for the rate of loss in quantity to the weight of 3.8mg.

A passage clear from the graph which was shown in drawing 3 and which shows weight reduction, and the graph which shows weight rate of change, if temperature becomes 100 degrees C or more, weight will decrease gradually, and it turns out that weight reduction is accelerated from near 400 degree C. And in an elevated-temperature field 500 degrees C or more, the weight of the soot-like matter decreases rapidly. This is that a lot of fullerene in the soot-like matter will sublime if it takes into consideration that the sublimation temperature of fullerene is 400-800 degrees C, and it turns out that the rapid decrease of weight of the soot-like matter arose.

[0069]

Furthermore, qualitative analysis of the gas constituents generated when the soot-like matter was heated was performed on condition that the following using the quadrupole form mass spectroscope (two to JEOL auto mass AM15 mold). A result is shown in drawing 4 .

Measuring method The :EI method

Furnace section temperature : 290 degrees C

Transfer tube temperature : 285 degrees C

GC oven temperature : 285 degrees C

Interface temperature : 285 degrees C

Ionization chamber temperature : 260 degrees C

Photograph mull electrical potential difference : 450V

Ionizing voltage : 70eV

Ionizing current :300microA

Mass range : 10-400amu

Scanning speed : 1000msec

[0070]

In drawing 4 , an axis of ordinate shows the relative intensity of an ion spectrum, and an axis of abscissa shows heating temperature. From drawing 4 , the peak which shows existence of multi-annular aromatic

compounds, such as aromatic compounds, such as benzene (molecular weight 78), toluene (molecular weight 92), and a xylene (molecular weight 106), and naphthalene (molecular weight 128), an anthracene (molecular weight 178), was checked in the temperature requirement lower than the sublimation temperature of fullerene in the gas which heated the soot-like matter and occurred. As for this, a multi-annular aromatic compound also shows that it is separable by the gaseous state as well as aromatic compounds, such as benzene.

Fullerene and/or a multi-annular aromatic compound are separable from the fullerene and the multi-annular aromatic compound which were obtained by the combustion method, and the soot-like matter containing a carbon system macromolecule component by the gaseous state with the above example. Therefore, from the air current containing such soot-like matter, it is possible to separate fullerene and/or a multi-annular aromatic compound by the gaseous state continuously, and fullerene is continuously understood are disengageable from the air current containing this soot-like matter.

[0071]

(Examples 2 and 3)

Next, the example 2 which checks the operation effectiveness of this invention and which went to accumulate is explained. In this example, the manufacturing installation 10 of the fullerene shown in drawing 1 was used. In addition, before using toluene (purity is high) as a hydrocarbon raw material and supplying toluene and oxygen to a burner 15, flow regulators A and B are formed in the supply way of the gasified toluene, and the supply way of oxygen, respectively, the mixing chamber which mixes the toluene and oxygen which passed each flow regulator A and B further is prepared, and it is considering as the structure which can supply the toluene and oxygen of a predetermined rate to a burner 15 by the specified quantity beforehand. Mixed gas is stably supplied in a furnace by adjusting these flow regulators A and B by producing the mixed gas which adjusted the elementary composition ratio (C/O ratio) of the carbon in the toluene to the oxygen at the time of toluene burning to the predetermined ratio, holding this produced mixed gas in the pressure accumulation interior of a room of a burner 15, and making it breathe out from the delivery of a burner 15.

[0072]

And a decompression device (vacuum pump) 14 is operated, the inside of the fullerene generation furnace 11 is exhausted, and the interior of the fullerene generation furnace 11 is held in the predetermined reduced pressure condition. By this, the generated soot-like matter content air current is supplied to the decollator 12 through an exhaust pipe 19 and the gas temperature fall means 16, carrying out the incomplete combustion of the mixed gas breathed out from the burner 15 under this reduced pressure condition.

By gas cooling equipment 13, it is cooled by temperature low enough and the air current which passed through the decollator 12 is once sent to a decompression device 14. Here, 30 shows a bulb.

[0073]

Next, the procedure of the example 2 of this invention and an example 3 is explained to a detail. the elementary composition ratio (C/O ratio) of the carbon in the toluene to the oxygen at the time of toluene burning -- 0.7 or more -- and 1.3 or less, the amount of toluene and the amount of oxygen are adjusted by each flow regulators A and B, respectively, it introduces in a mixing chamber, and mixed gas is produced so that it may become 1.0 or more and 1.2 or less preferably.

Subsequently, mixed gas is breathed out and burned in the fullerene generation furnace 11 in 70-100cm/second in rate from the discharge part of a burner 15, operating a decompression device 14 and exhausting the inside of the fullerene generation furnace 11. this time -- the inside of the fullerene generation furnace 11 -- for example, 20 or more Torrs -- and 100 or less Torrs of displacement of a decompression device 14 are adjusted so that it may be preferably maintained by the reduced pressure condition of 30 or more Torrs and 50 Torrs or less.

[0074]

Since the mixed gas of toluene and oxygen is in the condition by which premixing was fully carried out before being supplied in a furnace, combustion of toluene advances to homogeneity and it can make temperature in the fullerene generation furnace 11 homogeneity and an elevated temperature (for

example, 1600-2000 degrees C, preferably 1700-1900 degrees C).

Moreover, since C/O ratio furnace internal pressure is controlled in the predetermined range, in case non-burned toluene is heated and it decomposes, generation of the soot-like matter is controlled, and a fullerene precursor generates so much. For this reason, the generation rate of fullerene can improve and the yield of fullerene can be gathered.

[0075]

Here, in order to raise the temperature of combustion gas further, before carrying out the regurgitation of the mixed gas into the fullerene generation furnace 11, it is desirable to become hot beforehand. It heats, in case the electrical and electric equipment and a thermal heater are wound around piping and mixed gas passes as an approach, for example. In order to gather the yield of fullerene, the high temperature of the temperature of this preheating is [ that what is necessary is just beyond the temperature to which mixed gas maintains a gaseous state ] more desirable as much as possible. However, in order to prevent explosion by autogenous ignition etc., it carries out to under the carbon content compound, i.e., the self-ignition temperature of toluene.

The example in which it experimented using the manufacturing installation 10 of this fullerene is shown in Table 1, comparing with the conventional example.

[0076]

[Table 1]

	実施例 2	比較例	実施例 3
トルエン流量      mol/hr	68.7	68.7	171.75
等量比	2.95	2.95	2.95
炉内圧力      Toor	40	40	40
分離装置入口温度    °C	570	90	630
煤状物質生成量      g/hr	200	230	500
煤状物質中の フラーレン      %	21	20	
煤状物質中の多環状 芳香族化合物      ppm	57.6	348.6	
分離装置で捕集された煤状物質 中のフラーレン      %			14.5
ガス冷却装置内で回収された煤 状物質中のフラーレン      %			98.5

[0077]

In addition, the decollator entrance-side temperature in examples 2 and 3 and the example 1 of a comparison controlled the temperature of a soot-like matter content air current by controlling the gas temperature fall means 16.

The amount of the fullerene in the soot-like matter was measured with liquid chromatography, and the amount of the multi-annular aromatic compound in the soot-like matter was measured with the gas chromatography.

As shown also in Table 1, when temperature of the soot-like matter content air current supplied to a decollator 12 is made into 570 degrees C (in the case of an example 2), the multi-annular aromatic



compound in a soot-like matter content air current evaporates, the heat-resistant filter 20 is passed, and it turns out that fullerene is contained in the soot-like matter as a result.

Moreover, if temperature of the soot-like matter content air current supplied to a decollator 12 is made into 630 degrees C (in the case of an example 3), the amount of the fullerene collected with a decollator 12 will decrease, and the amount of fullerene which collects in the gas cooling equipment 13 of the latter part of a decollator 12 will increase. Therefore, fullerene is also recoverable in this case using the manufacturing installation 29 of the fullerene shown in drawing 2.

[0078]

#### 1. Conditions of above Mentioned Liquid Chromatography

Equipment: 1100 made from Agilent

Eluate: 48vol% TOL/MeOH A part for 0.8 m l./

Column: YMC-Pack ODS-AM, S-3 micrometers, 12nm  
75\*4.6mmI.D.

Column temperature: 40 degrees C Wavelength: 308nm

Injection rate: 5micro liter (60= 100-400 ppm of inside C of a sample)

((C) 70= 50-300 ppm of inside of a sample)

[0079]

#### 2. Procedure of Analysis of Fullerene in in Soot-like Matter

(1) Weigh 0.015g of soot-like matter precisely in 10 m l. screw tubing (A).

(2) Next, add trimethyl benzene (TMB) =7m l. (6g), and weigh a solvent addition precisely (B).

(3) After mixing, by the supersonic wave, process for 15 minutes and cool to a room temperature.

(4) Set a DESUMIKKU filter (0.5 micrometer-PTFE) to a plastic syringe.

(5) Add LC sample to a syringe 1m liter grade, and filter to LC vial bottle.

(6) Carry out LC analysis.

Dilution ratio = B/A (about 400)

[0080]

#### 1. The above mentioned gas chromatography was performed on condition that the following.

Equipment: H.P.6850 Series (FID)

Column: DB-1HT 15m \* 0.25mm 0.1 micrometers

(Precolumn: Deact Fused Silica 1m\*0.25mm)

Oven temperature: It is ->350 degree C (2 minutes) by 60 degrees C -> 12 degrees-C/. Total = 26.17 minutes

Inlet temperature: 350 degrees C Detector temperature: 360 degrees C

A part for column flow rate 1 m l./(helium=52.8kPa) Column + makeup

Flow rate: A part for 30 m l./

The impregnation approach: Split loess (purge time amount 2 minutes) Purge flow rate: A part for 50 m l./

Hydrogen flow rate: A part for 35 m l./ Air flow rate: A part for 350 m l./

Washing: Three sample -> washing, five pumps Five after [ impregnation ] washing

Injection rate: 1micro liter

Incorporation rate: 20Hz

[0081]

#### 2. Procedure (Multi-Annular Aromatic Compound Analysis in Soot-like Matter (Limit of Detection = 20 Ppm)) of Analysis of Multi-Annular Aromatic Compound in Soot-like Matter

\* If the soot-like matter concentration in a toluene (TOL) solution is high, a multi-annular aromatic compound component is not extracted by toluene, but since it remains in a multi-annular aromatic compound component, let it be the following dilution ratio.

(1) Weigh 0.01g of samples precisely to 25 m l. Erlenmeyer flask [A].

(2) Process toluene for 15 minutes and 5m l., in addition a supersonic wave extract it.

(3) Beforehand, set a DESUMIKKU filter (0.5 micrometer-PTFE) to 10 m l. glass syringe, and wash TOL=5m l. in 2 steps.

(Blank control from a filter)

(4) Weigh precisely the dry weight of a 100 m l. eggplant flask (lid lump) [B].

(5) Supply the sample whole quantity to a syringe and collect >50 m l. eggplant hula SUKOHE filtrate (solid content removal).

(6) Supply TOL=5m l. to a syringe again, and collect eggplant hula SUKOHE washing filtrate.

(7) Make an evaporator set and harden an eggplant flask by drying.

(8) Evaporator conditions (temperature = 50 degrees C, reduced pressure =250 ->60torr)

(9) Add TOL=1m l. with the syringe only for multi-annular aromatic compounds.

(10) Dissolve the multi-annular aromatic compound component in an eggplant flask (hand control).

(11) Weigh a sample + eggplant flask (lid lump) precisely [C].

(12) Move a sample to GC vial bottle and carry out GC analysis.

(13) The count approach

the multi-annular aromatic compound s (ppm) -- =IS concentration (ppm) / IS area \* \*\*\*\* annular aromatic compound s area \*([C]-[B])/[A]

\* Deduct a TOL solvent blank.

[0082]

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

**JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**DESCRIPTION OF DRAWINGS**

---

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the outline block diagram of the manufacturing installation of the fullerene concerning the gestalt of operation of the 1st of this invention.

[Drawing 2] It is the outline block diagram of the manufacturing installation of the fullerene concerning the gestalt of operation of the 2nd of this invention.

[Drawing 3] It is the graph which showed the weight reduction at the time of heating the soot-like matter.

[Drawing 4] It is the graph which shows the qualitative-analysis result of the gas which occurred when the said soot-like matter was heated.

[Description of Notations]

10: The manufacturing installation of fullerene, 11:fullerene generation furnace, 12:decollator, 13:gas cooling equipment, 14:decompression device, 15:burner, 16:gas temperature fall means, 17:pipe, 18:flange, 19:exhaust pipe, 20:thermal-resistance filter, 21:aeropulse device, 22:tank, 23:solenoid valve, 24:exhaust valve, 25:gas outlet, 27:decollator, 28:gas temperature fall means, the manufacturing installation of 29:fullerene, 30 : bulb

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

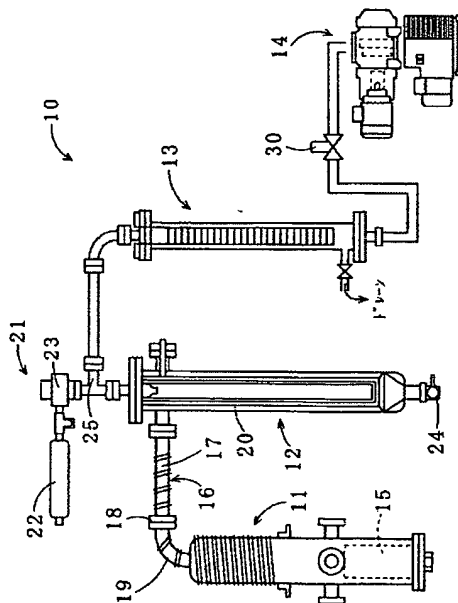
- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

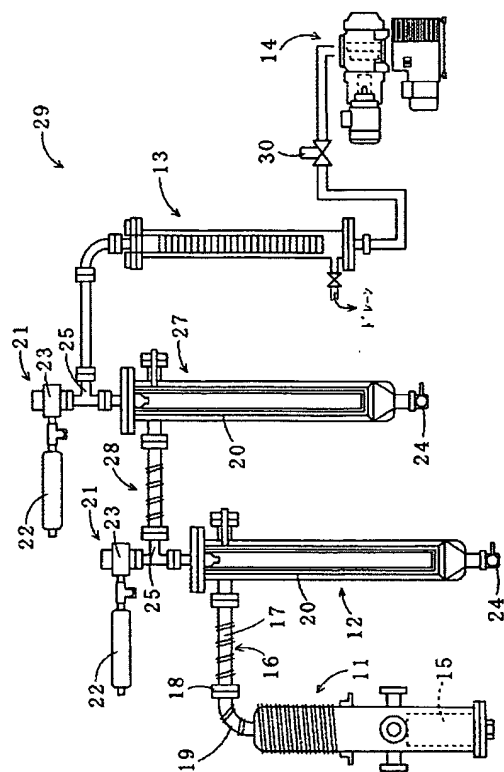
DRAWINGS

---

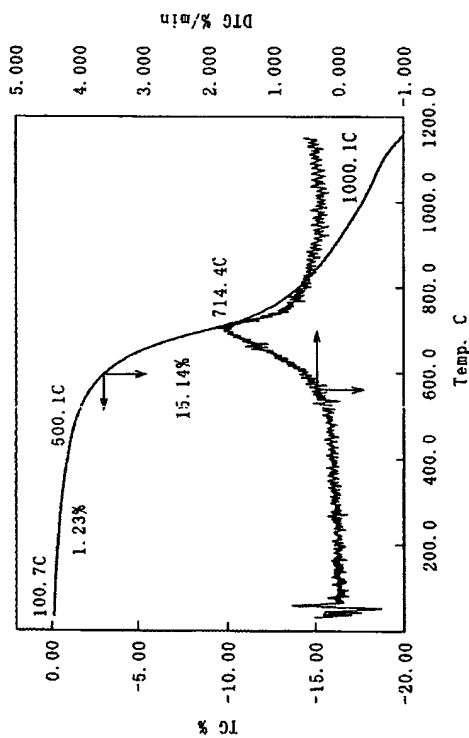
[Drawing 1]



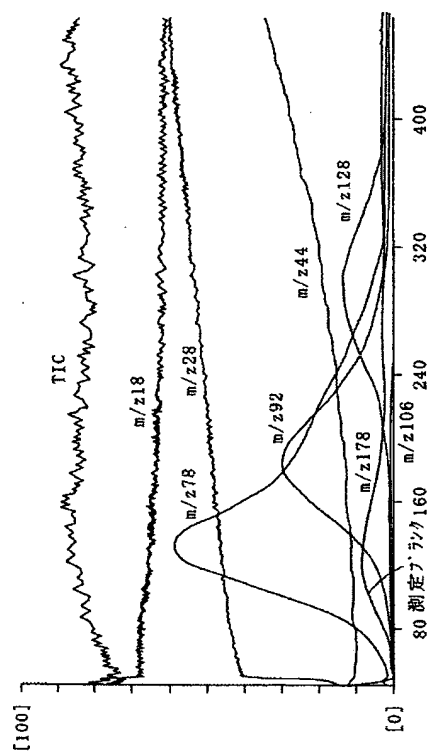
[Drawing 2]



[Drawing 3]



[Drawing 4]



[Translation done.]

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record.**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

### **IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**